

JP1996092224A

1996-4-9

## Bibliographic Fields

## Document Identity

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開平8-92224

(43)【公開日】

平成8年(1996)4月9日

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication Hei 8 - 92224

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1996 (1996) April 9 days

## Public Availability

(43)【公開日】

平成8年(1996)4月9日

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1996 (1996) April 9 days

## Technical

(54)【発明の名称】

3, 5-置換フェニルtriaゾール誘導体および  
殺虫、殺ダニ剤

(51)【国際特許分類第6版】

C07D249/08 512

A01N 43/653 A

47/18

47/22 B

47/32

C07D401/12 249

403/12 239

【請求項の数】

2

【出願形態】

FD

【全頁数】

45

(54) [Title of Invention]

3 AND 5 -SUBSTITUTED PHENYL TRIAZOLE  
DERIVATIVE AND INSECTICIDAL, MITICIDE

(51) [International Patent Classification, 6th Edition]

C07D249/08 512

A01N 43/653 A

47/18

47/22 B

47/32

C07D401/12 249

403/12239

[Number of Claims]

2

[Form of Application]

FD

[Number of Pages in Document]

45

## Filing

【審査請求】

未請求

(21)【出願番号】

[Request for Examination]

Unrequested

(21) [Application Number]

**JP1996092224A**

**1996-4-9**

特願平6-248813

Japan Patent Application Hei 6 - 248813

(22)【出願日】

(22) [Application Date]

平成6年(1994)9月16日

1994 (1994) September 16 days

**Parties**

**Applicants**

(71)【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】

[Identification Number]

000000169

000000169

【氏名又は名称】

[Name]

クミアイ化学工業株式会社

**KUMIAI CHEMICAL INDUSTRY CO. LTD. (DN  
69-112-2964 )**

【住所又は居所】

[Address]

東京都台東区池之端1丁目4番26号

Tokyo Prefecture Taito-ku Ikenohata 1-4-26

(71)【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】

[Identification Number]

000102049

000102049

【氏名又は名称】

[Name]

イハラケミカル工業株式会社

**IHARA CHEMICAL INDUSTRY CO. LTD. (DN  
69-060-0093 )**

【住所又は居所】

[Address]

東京都台東区池之端1丁目4番26号

Tokyo Prefecture Taito-ku Ikenohata 1-4-26

**Inventors**

(72)【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

尾崎 正美

Ozaki, Masami

【住所又は居所】

[Address]

静岡県磐田郡福田町塩新田408番地の1 株式会社ケイ・アイ研究所内

Inside of Shizuoka Prefecture Iwata-gun Fukude-cho  
Shioshinden 40 8-1 Kabushiki Kaisha K-I Research  
Laboratories

(72)【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

弓田 隆司

Yumita, Takashi

【住所又は居所】

[Address]

千葉県柏市西原1丁目18番6号301

Chiba Prefecture Kashiwa City Nishihara 1-Chome 18- 6  
number 301

(72)【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

鈴木 淳子

【住所又は居所】

静岡県磐田郡福田町塩新田408番地の1 株式会社ケイ・アイ研究所内

(72)【発明者】

【氏名】

中谷 昌央

【住所又は居所】

静岡県磐田郡福田町塩新田408番地の1 株式会社ケイ・アイ研究所内

(72)【発明者】

【氏名】

竹藤 伸雄

【住所又は居所】

静岡県磐田郡福田町塩新田408番地の1 株式会社ケイ・アイ研究所内

(72)【発明者】

【氏名】

矢野 祐幸

【住所又は居所】

静岡県小笠郡菊川町加茂1809番地

(72)【発明者】

【氏名】

浅岡 三枝子

【住所又は居所】

静岡県小笠郡菊川町加茂1809番地

(72)【発明者】

【氏名】

栗原 浩

【住所又は居所】

静岡県小笠郡菊川町青葉台1丁目6番4号

(72)【発明者】

【氏名】

Suzuki Junko

[Address]

Inside of Shizuoka Prefecture Iwata-gun Fukude-cho  
Shioshinden 40 8-1 Kabushiki Kaisha K-I Research  
Laboratories

(72) [Inventor]

[Name]

Nakatani Masao

[Address]

Inside of Shizuoka Prefecture Iwata-gun Fukude-cho  
Shioshinden 40 8-1 Kabushiki Kaisha K-I Research  
Laboratories

(72) [Inventor]

[Name]

Takefuji, Nobuo

[Address]

Inside of Shizuoka Prefecture Iwata-gun Fukude-cho  
Shioshinden 40 8-1 Kabushiki Kaisha K-I Research  
Laboratories

(72) [Inventor]

[Name]

Yano, Hiroyuki

[Address]

Shizuoka Prefecture Ogasa-gun Kikugawa-cho Kamo 1809  
address

(72) [Inventor]

[Name]

Asaoka Saegusa child

[Address]

Shizuoka Prefecture Ogasa-gun Kikugawa-cho Kamo 1809  
address

(72) [Inventor]

[Name]

Hiroshi Kurihara

[Address]

Shizuoka Prefecture Ogasa-gun Kikugawa-cho Aobadai 1-6-4

(72) [Inventor]

[Name]

平野 忠美

Hirano, Tadayoshi

【住所又は居所】

[Address]

静岡県掛川市葛ヶ丘3丁目9番地の2

Shizuoka Prefecture Kakegawa City Katsuragaoka 3-Chome 9 address 2

**Abstract**

(57)【要約】

(57) [Abstract]

【構成】

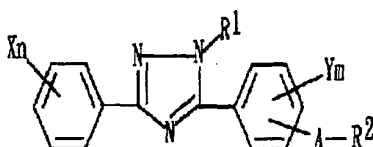
[Constitution]

一般式{I}

General Formula {I }

【化 1】

[Chemical Formula 1]



{式中、R<sup>1</sup>はアルキル基を示し、Xはハロゲン原子を示し、nは1~5の整数を示し、Yはハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルコキシ基またはハロアルキル基を示し、mは0または1~4の整数を示し、Aはメチルアミノメチル基、メチルアミノ基、アミノメチル基またはアミノ基を示し、R<sup>2</sup>は水素原子またはアルキル基を示す。}にて表されるトリアゾール誘導体およびこれを有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤である。

It is a triazole derivative which is displayed with {In Formula, R<sup>1</sup> shows alkyl group, X shows halogen atom, n shows integer 1 - 5, Y shows halogen atom, nitro group, cyano group, alkyl group, alkoxy group or haloalkyl group, m shows integer of 0 or 1~4, A methylamino methyl group, shows methylamino group, aminomethyl group or amino group, R<sup>2</sup> shows hydrogen atom or alkyl group. } and a insecticidal, miticide which contains this as active ingredient.

【効果】

[Effect(s)]

作物に悪影響を及ぼすことなく、種々の有害昆虫類、特にアブラムシ類、ハダニ類を殺滅防除することができる。

various harmful insect and especially Aphididae (aphids ), Tetranychidae (spider mite ) extermination can be prevented without causing adverse effect to crop.

**Claims**

【特許請求の範囲】

[Claim(s)]

【請求項 1】

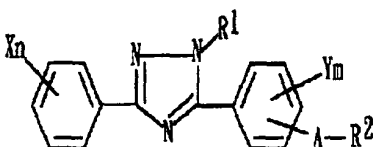
[Claim 1]

一般式

General Formula

【化 1】

[Chemical Formula 1]

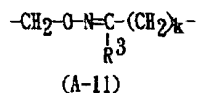
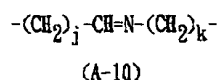
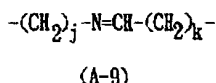
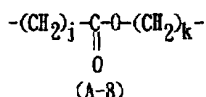
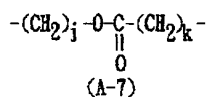
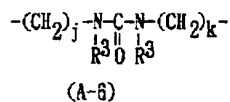
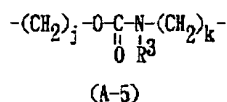
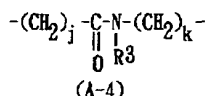
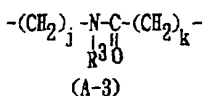
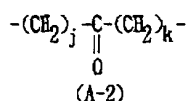
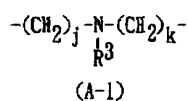


{式中、R<sup>1</sup>はアルキル基を示し、Xはハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ニトロ基、シアノ基またはハロアルキル基を示し、nは0または1~5の整数を示し、nが2以

{In Formula, R<sup>1</sup> shows alkyl group, X shows halogen atom, alkyl group, alkoxy group, alkyl thio group, nitro group, cyano group or haloalkyl group, n shows integer of 0 or 1~5, when n is 2 or more, X is good to option even with

上のとき X は任意に同種または異種の組み合わせでもよい。Y はハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ハロアルキル基またはハロアルコキシ基を示し、m は 0 または 1~4 の整数を示し、m が 2 以上のとき Y は任意に同種または異種の組み合わせでもよい。A は式}

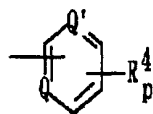
## 【化 2】



(式中、R<sup>3</sup> は水素原子、アルキル基またはシクロアルキル基を示し、j および k はそれぞれ 0 または 1 の整数を示す。)を示す。

R<sup>2</sup> は水素原子、アルキル基または式

## 【化 3】



(式中、Q および Q' はメチン基または窒素原子を示し、R<sup>4</sup> はハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アルキルスルフィニル基、アルキルスルホニル基、ハロアルキル基、ハロアルコキシ基、ハロアルキルチオ基、ハロアルキルスルフィニル基、ハロアルキルスルホニル基、アルキルアミノ基またはジアルキルアミノ基を示し、p は 0 または 1~3 の整数を示し、p が 2 以上のとき R<sup>4</sup> は任意に同種または異種の組み合わせでもよい。)を示す。

combination of the same kind or different kind. Y shows halogen atom, nitro group, cyano group, alkyl group, alkoxy group, alkyl thio group, haloalkyl group or haloalkoxy group, m shows integer of 0 or 1~4, when m is 2 or more, Y is good to option even with combination of same kind or different kind. As for A formula}

## [Chemical Formula 2]

(In Formula, R<sup>3</sup> shows hydrogen atom, alkyl group or cycloalkyl group, j and k show integer of 0 or 1 respectively.) is shown.

As for R<sup>2</sup> hydrogen atom, alkyl group or system

## [Chemical Formula 3]

(In Formula, Q and Q' show methine group or nitrogen atom, the R<sup>4</sup> shows halogen atom, nitro group, cyano group, alkyl group, alkoxy group, alkyl thio group, alkyl sulfinyl group, alkyl sulfonyl group, haloalkyl group, haloalkoxy group, haloalkyl thio group, haloalkyl sulfinyl group, haloalkyl sulfonyl group, alkyl amino group or dialkyl amino group, p shows integer of 0 or 1~3, when p is 2 or more, R<sup>4</sup> is good to option even with combination of same kind or different kind.) is shown.

に同種または異種の組み合わせでもよい。)を示す。

}にて表されるトリアゾール誘導体。

【請求項 2】

請求項 1 に記載のトリアゾール誘導体を有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤。

Specification

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】

本発明は、新規なトリアゾール誘導体およびこれを有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

これまで、殺虫、殺ダニ活性を有するトリアゾール誘導体として次の化合物が知られている。

たとえば、3,5-ビス(2-クロロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(特開昭 56-154464 号公報明細書)および 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(2,4-ジクロロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(リサーチディスクロージャー (Research Disclosure)278004 号)がある。

更に、3,5-ジフェニル-1-アルキル-1H-1,2,4-トリアゾール誘導体(特開平 5-310712 号公報明細書、特開平 6-97946 号公報明細書)が知られている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、これらの上記 2 化合物の活性の程度は、満足できるものではない。

【0004】

本発明者らは、新規でかつ有用な殺虫剤を開発すべく、3,5-ジフェニル-1-アルキル-1H-1,2,4-トリアゾール誘導体の 5 位フェニル環上の置換基について精力的に合成展開をおこない、その生理活性について鋭意検討を重ねた。

その結果、ある種の置換基が、種々の有害昆虫類、有害ダニ類に対し、特にコナガ、シロイチモジヨトウ、ニカメイガなどの鱗翅目害虫、ワタアブラムシなどのアブラムシ類、ナミハダニ、カ

} With triazole derivative. which is displayed

[Claim 2]

insecticidal, miticide, which contains triazole derivative which is stated in Claim 1 as the active ingredient

[Description of the Invention]

[0001]

[Field of Industrial Application]

this invention is something regarding novel triazole derivative and insecticidal, miticide which contains this as active ingredient.

[0002]

[Prior Art]

So far, following compound is known as triazole derivative which possesses the insecticidal, miticidal activity.

for example 3,5-bis (2 -chlorophenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4-triazole (Japan Unexamined Patent Publication Showa 56-154464 disclosure Specification ) and 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (2 and 4 -dichlorophenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole there is a (Research Disclosure (research Disclosure ) 278,004).

Furthermore, 3 and 5 -biphenyl-1- alkyl — 1 H-1,2, 4-triazole derivative (Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-31 0712 disclosure Specification、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-97946 disclosure Specification ) is known.

[0003]

[Problems to be Solved by the Invention]

But, extent of activity of these above-mentioned 2 compound is not something which it can be satisfied.

[0004]

these inventors, in order that and useful insecticide is developed with novel, did synthetic development in strenuous 3 and 5 -biphenyl-1- concerning substituent on 5 position phenyl ring of alkyl — 1 H-1,2, 4- triazole derivative, repeated diligent investigation concerning the physiological activity.

As a result, substituent of a certain kind, especially Plutella xylostella (Linnaeus ) (diamondback moth, cabbage moth ), Spodoptera exigua (Hubner ) (beet armyworm ), Chilo suppressalis (Walker ) (Asiatic rice borer ) or other

ンザワハダニ、ミカンハダニなどのハダニ類にも極めて優れた殺虫、殺ダニ活性を有することを見出し本発明を完成した。

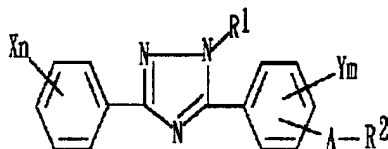
【0005】

【課題を解決するための手段】

即ち、本発明は一般式(I)

【0006】

【化 4】



【0007】

{式中、R<sup>1</sup>はアルキル基を示し、Xはハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ニトロ基、シアノ基またはハロアルキル基を示し、nは0または1~5の整数を示し、nが2以上のときXは任意に同種または異種の組み合わせでもよい。Yはハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、ハロアルキル基またはハロアルコキシ基を示し、mは0または1~4の整数を示し、mが2以上のときYは任意に同種または異種の組み合わせでもよい。Aは式}

【0008】

【化 5】

lepidopteran pest, Aphis gossypii Glover (cotton aphid) or other Aphididae (aphids), Tetranychus urticae Koch (two-spotted spider mite), the Tetranychus kanzawai Kishida (Kanzawa spider mite), has insecticidal, miticidal activity which quite is superior even in Panonychus citri [McGregor] (citrus red mite) or other Tetranychidae (spider mite) vis-a-vis various harmful insect and harmful mite, densely you discovered and completed this invention.

[0005]

[Means to Solve the Problems]

Namely, as for this invention General Formula {I}

[0006]

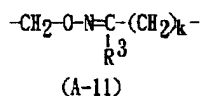
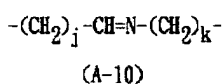
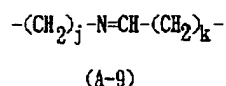
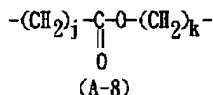
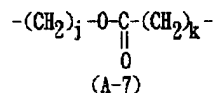
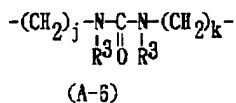
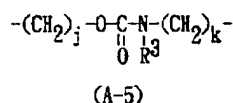
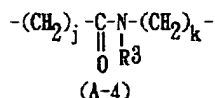
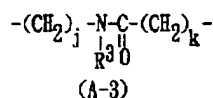
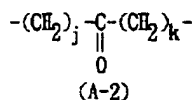
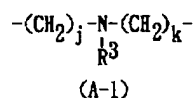
[Chemical Formula 4]

[0007]

{In Formula, R<sup>1</sup> shows alkyl group, X shows halogen atom, alkyl group, alkoxy group, alkyl thio group, nitro group, cyano group or haloalkyl group, n shows integer of 0 or 1~5, when n is 2 or more, X is good to option even with combination of the same kind or different kind. Y shows halogen atom, nitro group, cyano group, alkyl group, alkoxy group, alkyl thio group, haloalkyl group or haloalkoxy group, m shows integer of 0 or 1~4, when m is 2 or more, Y is good to option even with combination of same kind or different kind. As for A formula}

[0008]

[Chemical Formula 5]



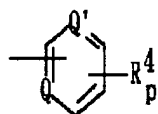
【0009】

(式中、R<sup>3</sup>は水素原子、アルキル基またはシクロアルキル基を示し、j および k はそれぞれ 0 または 1 の整数を示す。)を示す。

R<sup>2</sup>は水素原子、アルキル基または式

【0010】

【化 6】



【0011】

(式中、Q および Q' はメチン基または窒素原子を示し、R<sup>4</sup>はハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アルキルスルフィニル基、アルキルスルホニル基、ハロアルキル基、ハロアルコキシ基、ハロアルキルチオ基、ハロアルキルスルフィニル基、ハロアルキルスルホニル基、アルキルアミノ基またはジアルキルアミノ基を示し、p は 0 または 1~3 の整数を示し、p が 2 以上のとき R<sup>4</sup>は任意に同種または異種の組み合わせでもよい。)を示す。

）にて表されるトリアゾール誘導体ならびにこれを有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤であ

[0009]

(In Formula, R<sup>3</sup> shows hydrogen atom、alkyl group or cycloalkyl group, j and k show integer of 0 or 1 respectively. ) is shown.

As for R<sup>2</sup> hydrogen atom、alkyl group or system

[0010]

[Chemical Formula 6]

[0011]

(In Formula, Q and Q' show methine group or nitrogen atom, the R<sup>4</sup> shows halogen atom、nitro group、cyano group、alkyl group、alkoxy group、alkyl thio group、alkyl sulfinyl group、alkyl sulfonyl group、haloalkyl group、haloalkoxy group、haloalkyl thio group、haloalkyl sulfinyl group、haloalkyl sulfonyl group、alkyl amino group or dialkyl amino group, p shows integer of 0 or 1~3, when p is 2 or more, R<sup>4</sup> is good to option even with combination of same kind or different kind. ) is shown.

） With it is a triazole derivative which is displayed and a insecticidal、miticide which contains this as active ingredient.



る。

【0012】

尚、本明細書において、アルキル基とは、炭素数が 1~6 の直鎖または分岐鎖状のアルキル基を示し、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、イソアミル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基、3,3-ジメチルブチル基等を挙げることができる。

【0013】

アルコキシ基、アルキルチオ基、アルキルスルフィニル基およびアルキルスルホニル基とは、それぞれアルキル部分が上記の意味を示す(アルキル)-O-基、(アルキル)-S-基、(アルキル)-SO-基および(アルキル)-SO<sub>2</sub>-基である。

【0014】

ハロゲン原子とは、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素原子を示す。

【0015】

ハロアルキル基とは、ハロゲン原子によって置換されたアルキル基を示し、例えばジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基等を挙げることができる。

【0016】

ハロアルコキシ基とは、ハロアルキル部分が上記の意味を示す(ハロアルキル)-O-基であり、例えばジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、ペンタフルオロエトキシ基等を挙げることができる。

【0017】

ハロアルキルチオ基、ハロアルキルスルホニル基およびハロアルキルスルフィニル基とはそれぞれアルキル部分がハロゲン原子によって置換されたアルキルチオ基、アルキルスルホニル基およびアルキルスルフィニル基を示す。

【0018】

アルキルアミノ基とは、炭素数 1~3 の直鎖または分岐したアルキルアミノ基を示し、例えばメチルアミノ基、エチルアミノ基等を挙げることができる。

【0019】

ジアルキルアミノ基とは、炭素数 1~3 の直鎖または分岐したアルキル基が 2 つ結合したアミノ基を示し、例えばジメチルアミノ基、ジエチルアミ

[0012]

Furthermore alkyl group, carbon number shows alkyl group of straight chain or branched chain condition 1- 6 in this specification, can list for example methyl group, ethyl group, n- propyl group, isopropyl group, n- butyl group, isobutyl group, s-butyl group, t-butyl group, n- pentyl group, isoamyl group, neopentyl group, n- hexyl group, isohexyl group, 3, 3- dimethylbutyl group etc.

[0013]

alkoxy group, alkyl thio group, alkyl sulfinyl group and alkyl sulfonyl group, respective alkyl portion shows above-mentioned meaning, (alkyl ) -O- group, (alkyl ) -S- basis, (alkyl ) -SO- it is basis and (alkyl ) -SO<sub>2</sub>- a basis.

[0014]

halogen atom, fluorine, chlorine, bromine, iodine atom is shown.

[0015]

haloalkyl group, alkyl group which is substituted with halogen atom is shown, the for example difluoromethyl group, trifluoromethyl group, pentafluoroethyl group etc can be listed.

[0016]

haloalkoxy group, haloalkyl part shows above-mentioned meaning, (haloalkyl ) with-O- group , for example difluoromethoxy group, trifluoromethoxy group, penta fluoroethoxy group etc can be listed.

[0017]

haloalkyl thio group, haloalkyl sulfonyl group and haloalkyl sulfinyl group alkyl thio group, alkyl sulfonyl group and alkyl sulfinyl group where respective alkyl portion is substituted with halogen atom are shown.

[0018]

alkyl amino group which straight chain or branch of carbon number 1~3 is done alkyl amino group, is shown, for example methylamino group, ethylamino group etc can be listed.

[0019]

alkyl group which straight chain or branch of carbon number 1~3 is done dialkyl amino group, two shows amino group which is connected, can list for example dimethylamino

ノ基、メチルエチルアミノ基等を挙げることができる。

## 【0020】

シクロアルキル基とは、炭素数が 3~6 のシクロアルキル基を示し、例えばシクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等を挙げることができる。

## 【0021】

前記一般式[I]における A を具体的に挙げれば、(A-1)としては例えばメチルアミノメチル基、メチルアミノ基、アミノメチル基、アミノ基、メチル-N-メチルアミノメチル基、メチル-N-メチルアミノ基、N-メチルアミノメチル基、N-メチルアミノ基等を挙げることができる。

(A-2)としては例えばメチルカルボニルメチル基、メチルカルボニル基、カルボニルメチル基、カルボニル基等を挙げることができる。

## 【0022】

(A-3)としては例えばメチルカルボニルアミノメチル基、メチルカルボニルアミノ基、カルボニルアミノメチル基、カルボニルアミノ基、メチルカルボニル-N-メチルアミノメチル基、メチルカルボニル-N-メチルアミノ基、カルボニル-N-メチルアミノメチル基、カルボニル-N-メチルアミノ基等を挙げることができる。

(A-4)としては例えばメチルカルバモイルメチル基、メチルカルバモイル基、カルバモイルメチル基、カルバモイル基、メチル-N-メチルカルバモイルメチル基、メチル-N-メチルカルバモイル基、N-メチルカルバモイルメチル基、N-メチルカルバモイル基等を挙げることができる。

## 【0023】

(A-5)としては例えばメチルカルバモイルオキシメチル基、メチルカルバモイルオキシ基、カルバモイルオキシメチル基、カルバモイルオキシ基、メチル-N-メチルカルバモイルオキシメチル基、メチル-N-メチルカルバモイルオキシ基、N-メチルカルバモイルオキシメチル基、N-メチルカルバモイルオキシ基等を挙げることができる。

(A-6)としては例えばメチルカルバモイルアミノメチル基、メチルカルバモイルアミノ基、カルバモイルアミノメチル基、カルバモイルアミノ基、メチル-N-メチルカルバモイル-N-メチルアミノメチル基、メチル-N-メチルカルバモイルアミノメチル基、メチルカルバモイル-N-メチルアミノメチル基等を挙げることができる。

group, diethyl amino base and methylethyl amino base etc.

## 【0020】

cycloalkyl group, carbon number shows cycloalkyl group 3, -6 can list for example cyclopropyl group, cyclopentyl group, cyclohexyl group etc.

## 【0021】

If A in aforementioned General Formula {I} is listed concretely, the for example methylamino methyl group, methylamino group, aminomethyl group, amino group, methyl-N- methylamino methyl group, methyl-N- methylamino group, N- methylamino methyl group and N- methylamino group etc can be listed (A-1 ) as.

for example methyl carbonyl methyl group, methyl carbonyl group, carbonyl methyl group, carbonyl group etc can be listed (A-2 ) as.

## 【0022】

for example methyl carbonyl aminomethyl group, methyl carbonyl amino group, carbonyl aminomethyl group, carbonyl amino group, methyl carbonyl-N- methylamino methyl group, methyl carbonyl-N- methylamino group, carbonyl-N- methylamino methyl group and carbonyl-N- methylamino group etc can be listed (A-3 ) as.

for example methyl carbamoyl methyl group, methyl carbamoyl group, carbamoyl methyl group, carbamoyl group, methyl-N- methyl carbamoyl methyl group, methyl-N- methyl carbamoyl group, N- methyl carbamoyl methyl group, N- methyl carbamoyl group etc can be listed (A-4 ) as.

## 【0023】

for example methyl carbamoyl oxy methyl group, methyl carbamoyl oxy group, carbamoyl oxy methyl group, carbamoyl oxy group, methyl-N- methyl carbamoyl oxy methyl group, methyl-N- methyl carbamoyl oxy group, N- methyl carbamoyl oxy methyl group, N- methyl carbamoyl oxy group etc can be listed (A-5 )as.

for example methyl carbamoyl aminomethyl group, methyl carbamoyl amino group, carbamoyl aminomethyl group, carbamoyl amino group, methyl-N- methyl carbamoyl-N- methylamino methyl group and methyl-N- methyl carbamoyl aminomethyl group, methyl carbamoyl-N- methylamino methyl group etc can be listed (A-6 )as.

[0024]

(A-7)としては例えばメチルカルボニルオキシメチル基、メチルカルボニルオキシ基、カルボニルオキシメチル基、カルボニルオキシ基等を挙げることができる。

(A-8)としては例えばメチルオキシカルボニルメチル基、メチルオキシカルボニル基、オキシカルボニルメチル基、オキシカルボニル基等を挙げることができる。

[0025]

(A-9)としては例えばエチリデンアミノメチル基、エチリデンアミノ基、メチリデンアミノメチル基、メチリデンアミノ基等を挙げることができる。

(A-10)としては例えばメチルイミノエチル基、メチルイミノメチル基、イミノエチル基、イミノメチル基等を挙げることができる。

[0026]

(A-11)としては例えばメチルメチリデンアミノオキシメチル基、メチルメチリデンアミノオキシ基、メチリデンアミノオキシメチル基、メチリデンアミノオキシ基、メチル-1-エチリデンアミノオキシメチル基、メチル-1-エチリデンアミノオキシ基、1-エチリデンアミノオキシメチル基、1-エチリデンアミノオキシ基、メチルシクロプロピルメチリデンアミノオキシメチル基、メチルシクロプロピルメチリデンアミノオキシ基、シクロプロピルメチリデンアミノオキシメチル基、シクロプロピルメチリデンアミノオキシ基等を挙げることができる。

[0027]

好ましい化合物群としては、前記一般式[I]において、 $R^1$ が炭素数1~6の直鎖または分岐鎖アルキル基であり、Xがハロゲン原子であり、nが1~2の整数であり、nが2のときXは任意に同種または異種の組み合わせでもよく、Yがハロゲン原子であり、mが0~2の整数であり、mが2のときYは任意に同種または異種の組み合わせでもよく、Aが

[0028]

[化7]



[0029]

(式中、 $R^3$ は炭素数1~6の直鎖または分岐鎖の

[0024]

for example methyl carbonyl oxy methyl group, methyl carbonyl oxy group, carbonyl oxy methyl group, carbonyl oxy group etc can be listed (A-7) as.

for example methyl oxycarbonyl methyl group, methyl oxycarbonyl group, oxycarbonyl methyl group, oxycarbonyl group etc can be listed (A-8) as.

[0025]

for example ethylidene aminomethyl group, ethylidene amino group, methylidene aminomethyl group, methylidene amino group etc can be listed (A-9) as.

for example methyl imino ethyl group, methyl imino methyl group, imino ethyl group, imino methyl group etc can be listed (A-10) as.

[0026]

for example methyl methylidene aminooxy methyl group, methyl methylidene aminooxy group, methylidene aminooxy methyl group, methylidene aminooxy group, methyl-1-ethylidene aminooxy methyl group, methyl-1-ethylidene aminooxy group, 1-ethylidene aminooxy methyl group, 1-ethylidene aminooxy group, methyl cyclopropyl methylidene aminooxy methyl group, methyl cyclopropyl methylidene aminooxy group, cyclopropyl methylidene aminooxy methyl group, cyclopropyl methylidene aminooxy group etc can be listed (A-11) as.

[0027]

As desirable group of compounds,  $R^1$  with straight chain or branched chain alkyl group of carbon number 1~6, the X being halogen atom in aforementioned General Formula {I}, when n with integer of 1 - 2, n 2 being, X to be good to option even with combination of same kind or different kind, Y being the halogen atom, m with integer 0 - 2, When m 2 being, Y to be good to option even with combination of same kind or different kind, A

[0028]

[Chemical Formula 7]

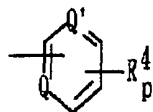
[0029]

With group which is displayed with (In Formula, as for  $R^3$

アルキル基または炭素数 3~6 のシクロアルキル基であり、j および k は 0 または 1 である。) で表される基であり、R<sup>2</sup> が水素原子、炭素数 1~6 の直鎖または分岐鎖のアルキル基または

【0030】

【化 8】



【0031】

(式中、Q および Q' はメチン基または窒素原子であり、R<sup>4</sup> はハロゲン原子、炭素数 1~6 の直鎖または分岐鎖のアルコキシ基、炭素数 1~6 の直鎖または分岐鎖のハロアルキル基または炭素数 1~6 の直鎖または分岐鎖のハロアルコキシ基であり、p は 0~3 の整数であり、p が 2 または 3 の時、R<sup>4</sup> は任意に同種または異種の組み合わせでもよい。) で表される基である化合物をあげることができる。

【0032】

次に、一般式 [I] で表される本発明化合物の代表的な具体例を表 1~表 26 に例示する。

尚、化合物番号は以後の記載において参照される。

【0033】

【表 1】

with alkyl group of straight chain or branched chain of the carbon number 1~6 or cycloalkyl group of carbon number 3~6, as for j and k they are 0 or 1. ), R<sup>2</sup> alkyl group of straight chain or branched chain of hydrogen atom, carbon number 1~6 or

[0030]

[Chemical Formula 8]

[0031]

compound which is a group which is displayed with (In Formula, as for Q and Q' with methine group or the nitrogen atom, as for R<sup>4</sup> with haloalkyl group of straight chain or branched chain of alkoxy group, carbon number 1~6 of straight chain or branched chain of halogen atom, carbon number 1~6 or haloalkoxy group of straight chain or branched chain of carbon number 1~6, as for p when with integer 0 - 3, p is 2 or 3, as for the R<sup>4</sup> it is good to option even with combination of same kind or different kind. ) is increased, it is possible densely.

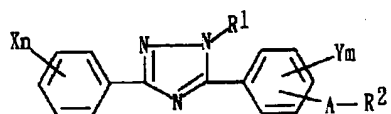
[0032]

Next, representative embodiment of the compound of this invention which is displayed with General Formula {I} is illustrated to Table 1~Table 26.

Furthermore compound number is referred to at time of stating from now on.

[0033]

[Table 1]










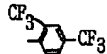
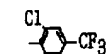
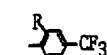
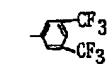
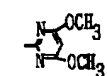
化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
1	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2, 6-Cl <sub>2</sub>	3-NH-	-H	130-133
2	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	3-NH-	-H	117-122
3	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	4-Cl	3-NH-	-H	106-109
4	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		113-118
5	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		164-166
6	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2, 6-Cl <sub>2</sub>	3-NH-		150-155
7	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	4-Cl	3-NH-		200-202.5
8	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	5-CF <sub>3</sub>	3-NH-		173-178
9	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		
10	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	3-NH-		
11	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		
12	CH <sub>3</sub>	2-Cl	2-Cl	3-NH-		

【0034】

【表 2】

[0034]

[Table 2]
















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
13	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	3-NH-		166-169
14	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	2-Cl	3-NH-		124-128
15	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	5-CF <sub>3</sub>	3-NH-		
16	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	3-NH-		
17	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		
18	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	3-NH-		
19	CH <sub>3</sub>	2, 6-Cl <sub>2</sub>	H	3-NH-		
20	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		
21	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		
22	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NH-		
23	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	3-NH-		
24	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-	-H	173-176
25	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-	-H	51-55
26	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2, 6-Cl <sub>2</sub>	4-NH-	-H	170-174
27	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		75-79

【0035】

【表 3】

[0035]

[Table 3]

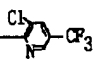
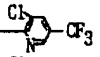
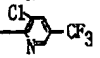
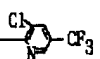
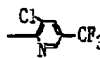
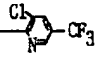
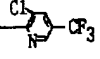
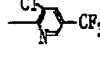
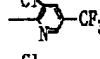
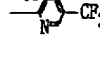
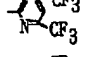
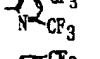
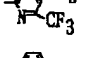
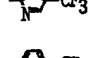

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
28	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-		162-163
29	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
30	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
31	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-		
32	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
33	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	2-Cl	4-NH-		
34	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
35	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
36	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
37	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
38	C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
39	C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
40	CH <sub>3</sub>	2-CF <sub>3</sub>	H	4-NH-		
41	CH <sub>3</sub>	2-CH <sub>3</sub>	H	4-NH-		
42	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-NH-		

【0036】

【表 4】

[0036]

[Table 4]

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
43	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		197-202
44	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-		239-241
45	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
46	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
47	C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
48	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
49	CH <sub>3</sub>	2-OCH <sub>3</sub>	H	4-NH-		
50	CH <sub>3</sub>	2-SCH <sub>3</sub>	H	4-NH-		
51	CH <sub>3</sub>	2-NO <sub>2</sub>	H	4-NH-		
52	CH <sub>3</sub>	2-CN	H	4-NH-		
53	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
54	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
55	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2, 6-Cl <sub>2</sub>	3-NH-		170-171
56	CH <sub>3</sub>	2, 6-Cl <sub>2</sub>	H	4-NH-		
57	CH <sub>3</sub>	2, 6-Cl <sub>2</sub>	2-Cl	4-NH-		
















【0037】

【表 5】

[0037]

[Table 5]












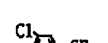


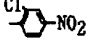
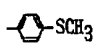

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
58	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
59	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	2-Cl	4-NH-		
60	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
61	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
62	C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
63	CH <sub>3</sub>	2-CH <sub>3</sub>	H	4-NH-		
64	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-NH-		
65	CH <sub>3</sub>	2-Cl	2-Cl	4-NH-		
66	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		171-173
67	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-		88-92
68	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2, 6-Cl <sub>2</sub>	4-NH-		250-255
69	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
70	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
71	C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
72	CH <sub>3</sub>	2-SCH <sub>3</sub>	H	4-NH-		

【0038】

【表 6】

[0038]

[Table 6]















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
73	CH <sub>3</sub>	2-OCH <sub>3</sub>	H	4-NH-		
74	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
75	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
76	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
77	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
78	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
79	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
80	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-		
81	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
82	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
83	CH <sub>3</sub>	2,6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
84	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
85	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
86	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
87	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		

【0039】

【表 7】

[0039]

[Table 7]


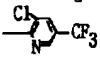




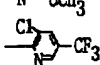

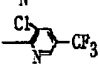
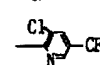



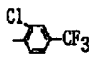
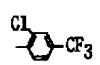
化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
88	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
89	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
90	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
91	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
92	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
93	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
94	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
95	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
96	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
97	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
98	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		181-184
99	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NH-		
100	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-		
101	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NH-		
102	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	5-NH-	-H	66-70

【0040】

【表 8】

[0040]

[Table 8]

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
103	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-N(CH <sub>3</sub> )		測定不可
104	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-N(CH <sub>3</sub> )		
105	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-N(CH <sub>3</sub> )		
106	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-N(CH <sub>3</sub> )		
107	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )		測定不可
108	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-N(CH <sub>3</sub> )		
109	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )		
110	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )		
111	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		111-114
112	CH <sub>3</sub>	2-CF <sub>3</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
113	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
114	CH <sub>3</sub>	2-CF <sub>3</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
115	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
116	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
117	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-CH <sub>2</sub> NH-		

【0041】

【表 9】

[0041]

[Table 9]











化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
118	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-CH <sub>2</sub> NH-		
119	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-CH <sub>2</sub> NH-		
120	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
121	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
122	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
123	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
124	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
125	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
126	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
127	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
128	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> NH-		
129	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCH <sub>2</sub> -		154-157
130	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCH <sub>2</sub> -		
131	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCH <sub>2</sub> -		157-162
132	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NHCH <sub>2</sub> -		160-163

【0042】

【表 10】

[0042]

[Table 10]
















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
133	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCH <sub>2</sub> -		
134	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )CH <sub>2</sub> -		
135	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-CO-		
136	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-CO-		
137	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-	-H	97-102
138	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CO-	-H	測定不可
139	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-		
140	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-		
141	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	3-NHCO-	-H	68-72
142	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	3-NHCO-		233-234.5
143	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-NHCO-		228.5-231
144	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NHCO-	-H	81-85
145	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-	-H	76-81
146	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-		
147	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-		

【0043】

【表 11】

[0043]

[Table 11]


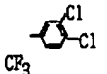













化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
148	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-		186-189
149	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-		
150	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NHCO-		
151	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-NHCO-		81-86
152	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-NHCO-		
153	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-		
154	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NHCO-		204-205
155	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-NHCO-		
156	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCO-		
157	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-NHCO-		197-200
158	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	3-N(CH <sub>3</sub> )CO-		
159	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-N(CH <sub>3</sub> )CO-		
160	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-N(CH <sub>3</sub> )CO-		221-222
161	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )CO-		
162	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )COCH <sub>2</sub> -		

【0044】

【表 12】

[0044]

[Table 12]

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
163	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )COCH <sub>2</sub> -		
164	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N(CH <sub>3</sub> )COCH <sub>2</sub> -		
165	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
166	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
167	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
168	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
169	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
170	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
171	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
172	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
173	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
174	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
175	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
176	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		
177	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NH-COCH <sub>2</sub> -		

【0045】

【表 13】

[0045]

[Table 13]






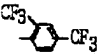
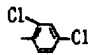







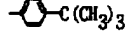
化合 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
178	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		161-166
179	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
180	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
181	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
182	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
183	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-CO-NH-		
184	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-CO-NH-		
185	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-CO-NH-		
186	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
187	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
188	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		99-104
189	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
190	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
191	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
192	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		

【0046】

【表 14】

[0046]

[Table 14]





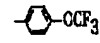
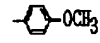

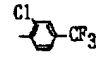
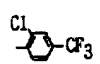
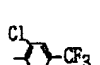
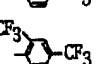
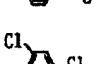
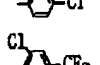
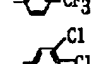
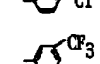
化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
193	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		174-179
194	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
195	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-NH-		
196	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-	-CH <sub>3</sub>	
197	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	
198	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		
199	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		
200	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-O-CO-NH-		
201	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-O-CO-NH-		
202	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-O-CO-NH-		
203	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		
204	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		
205	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		
206	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		
207	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-NH-		

【0047】

【表 15】

[0047]

[Table 15]


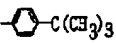











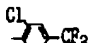

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
208	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		138-140.5
209	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		
210	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		
211	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		
212	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		
213	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		
214	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CONH-		
215	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
216	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
217	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
218	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
219	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
220	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
221	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
222	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		

【0048】

【表 16】

[0048]

[Table 16]
















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
223	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		149-154
224	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
225	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
226	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
227	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
228	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
229	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
230	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
231	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
232	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
233	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
234	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
235	CH <sub>3</sub>	2-OCH <sub>3</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CONH-		
236	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-O-CO-		
237	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-O-CO-		

【0049】

【表 17】

[0049]

[Table 17]
















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
238	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 5-F	H	3-O-CO-		47-52
239	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 5-F	H	4-O-CO-		
240	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
241	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	H	4-O-CO-		
242	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
243	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	2, 6-Cl <sub>2</sub>	4-O-CO-		
244	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	2-Cl	4-O-CO-		
245	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	3, 5-Cl <sub>2</sub>	4-O-CO-		
246	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Br	4-O-CO-		
247	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-CH <sub>3</sub>	4-O-CO-		
248	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	3-Cl	4-O-CO-		
249	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	3-F	4-O-CO-		
250	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	3-F	4-O-CO-		
251	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	3-OCH <sub>3</sub>	4-O-CO-		
252	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 3-F	H	4-O-CO-		131-135

【0050】

【表 18】

[0050]

[Table 18]














化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
253	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-CN	4-O-CO-		136-140
254	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
255	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-O-CO-		1.5708
256	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
257	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
258	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
259	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-NO <sub>2</sub>	4-O-CO-		
260	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-SCH <sub>3</sub>	4-O-CO-		
261	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-OCF <sub>3</sub>	4-O-CO-		
262	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Br	4-O-CO-		
263	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-CH <sub>3</sub>	4-O-CO-		
264	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
265	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-O-CO-		
266	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-O-CO-		
267	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-O-CO-		

【0051】

【表 19】

[0051]

[Table 19]
















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
268	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-O-CO-		
269	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-O-CO-		
270	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
271	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-O-CO-		
272	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-O-CO-		
273	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-CO-		
274	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	5-O-CO-		
275	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-	-CH <sub>3</sub>	1.5917
276	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-	-CH <sub>3</sub>	測定不可
277	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
278	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
279	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
280	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		測定不可
281	CH <sub>3</sub>	2-Cl	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
282	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		98-103

【0052】

【表 20】

[0052]

[Table 20]

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
283	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		測定不可
284	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
285	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
286	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
287	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
288	CH <sub>3</sub>	2, 6-Cl <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		測定不可
289	CH <sub>3</sub>	2-Cl	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
290	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
291	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
292	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
293	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		112-116
294	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
295	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
296	CH <sub>3</sub>	2, 6-Cl <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
297	CH <sub>3</sub>	2-Cl	2-F	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
















【0053】

【表 21】

[0053]

[Table 21]



化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
298	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		105-110
299	CH <sub>3</sub>	2-Cl	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
300	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
301	CH <sub>3</sub>	2-Cl	3-OCH <sub>3</sub>	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
302	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-OCH <sub>3</sub>	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
303	CH <sub>3</sub>	2-Cl	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
304	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
305	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
306	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
307	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
308	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> O-CO-		
309	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
310	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
311	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
312	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-O-COCH <sub>2</sub> -		

【0054】

【表 22】

[0054]

[Table 22]
















化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
313	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
314	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
315	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
316	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
317	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
318	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
319	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
320	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
321	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
322	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
323	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
324	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
325	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-O-COCH <sub>2</sub> -		
326	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
327	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		

【0055】

【表 23】

[0055]

[Table 23]













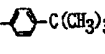
化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
328	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		154-159
329	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
330	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
331	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
332	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
333	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
334	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
335	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		142-146
336	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
337	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-CO-O-		
338	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-CO-O-		
339	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-CO-O-		
340	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
341	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
342	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		

【0056】

【表 24】

[0056]

[Table 24]












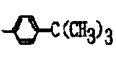










化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
343	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		224-227
344	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-	-H	
345	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-	-CH <sub>3</sub>	
346	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CO-O-		
347	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	3-N=CH-		139-143
348	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N=CH-		
349	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N=CH-		
350	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N=CH-		
351	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N=CH-		126-128
352	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-N=CH-		
353	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH=N-		
354	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH=N-		
355	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH=N-		150-152
356	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
357	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		

【0057】

【表 25】

[0057]

[Table 25]



























化合物 番号	R <sup>1</sup>	X n	Y m	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
358	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		1.6155
359	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
360	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
361	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
362	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
363	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
364	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
365	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C(CH <sub>3</sub> )-		
366	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
367	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
368	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
369	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
370	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
371	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
372	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		

【0058】

【表 26】

[0058]

[Table 26]

化合物 番号	R <sup>1</sup>	X <sub>n</sub>	Y <sub>m</sub>	A	R <sup>2</sup>	融点 (°C) または 屈折率 (n <sub>D</sub> <sup>20</sup> )
373	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-F	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
374	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-F	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
375	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	2-Cl	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
376	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	3-Cl	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
377	CH <sub>3</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
378	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
379	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
380	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
381	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
382	C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
383	C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>	2, 6-F <sub>2</sub>	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
384	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-CH <sub>2</sub> ON=C- 		
385	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCONH-		221-225
386	CH <sub>3</sub>	2-Cl, 6-F	H	4-NHCONH-		203.5-205

本発明化合物は下記の製造法 1 から製造法 12 に従って製造することができるが、この方法に限定されるものではない。

製造法 1

【0059】

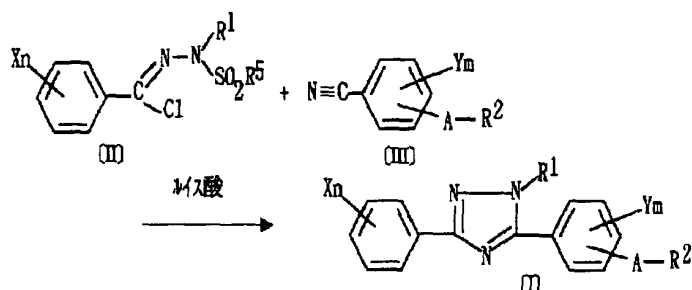
【化 9】

From below-mentioned production method 1 following to production method 12, it can produce the compound of this invention, but it is not something which is limited in this method.

production method 1

【0059】

[Chemical Formula 9]



【0060】

(式中、 $R^5$  はアルキル基またはアルキル基で置換されてもよいフェニル基を示し、 $A$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $m$ 、および  $n$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 1 において、一般式〔II〕で表されるベンゾヒドラゾノイルクロライド誘導体とルイス酸の存在下、一般式〔III〕で表されるベンズニトリル誘導体を不活性溶媒中で反応させて一般式〔I〕で表される本発明化合物を得ることができる。

【0061】

使用できる溶媒としては、反応を阻害しない溶媒であれば良く、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジグリム等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、ニトロベンゼン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、*o*-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、*N,N*-ジメチルホルムアミド、*N,N*-ジメチルアセトアミド等のアミド類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0062】

使用するルイス酸としては臭化アルミニウム、塩化アルミニウム、塩化第二鉄、三フッ化ホウ素、四塩化チタン等を用いる事ができる。

また、反応試剤の使用量は、通常、一般式〔II〕で示される化合物 1 モルに対し、一般式〔III〕で示される化合物が 1.0~2.0 倍モル、ルイス酸が 1.0~2.0 倍モルである。

【0063】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は化合物により異なるが通常 30 分~5

[0060]

(In Formula,  $R^5$  shows optionally substitutable phenyl group with alkyl group or alkyl group,  $A$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $X$ ,  $Y$ ,  $m$ , and  $n$  show same meaning as description above.)

In production method 1, under existing of benzo hydrazonoyl chloride derivative and Lewis acid which are displayed with General Formula {II}, it can acquire the compound of this invention which reacting in inert solvent, is displayed benzonitrile derivative which is displayed with General Formula {III} with General Formula {I}.

[0061]

If it is a solvent which does not obstruct reaction as solvent which you can use, it is good, for example diethyl ether, tetrahydrofuran, dioxane, diglyme or other ethers, benzene, toluene, nitrobenzene or other aromatic hydrocarbons, pentane, hexane, petroleum ether or other aliphatic hydrocarbons, dichloromethane, dichloroethane, chloroform, carbon tetrachloride, 1, 2- dichloroethane, chlorobenzene, *o*-dichlorobenzene or other halogenated hydrocarbons, *N,N*- dimethylformamide, *N,N*- dimethylacetamide or other amides, and it can use mixed solvent which combines solvent which is selected from these.

[0062]

It is possible to use aluminum bromide, aluminum chloride, ferric chloride, boron trifluoride, titanium tetrachloride etc, as Lewis acid which you use.

In addition, as for amount used of reactant, compound which is shown with General Formula {III} vis-a-vis compound 1 mole which usually, is shown with the General Formula {II}, 1.0 - 2.0 times mols, Lewis acid is 1.0 - 2.0 times mols.

[0063]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

reaction time differs depending upon compound but it can set

時間の間で設定できる。

【0064】

この反応の具体例は例えばブリティン・オブ・ザ・ケミカル・ソサエティー・オブ・ジャパン (Bull.Chem.Soc.Jpn)第56巻、第545頁(1983年)に記載されている。

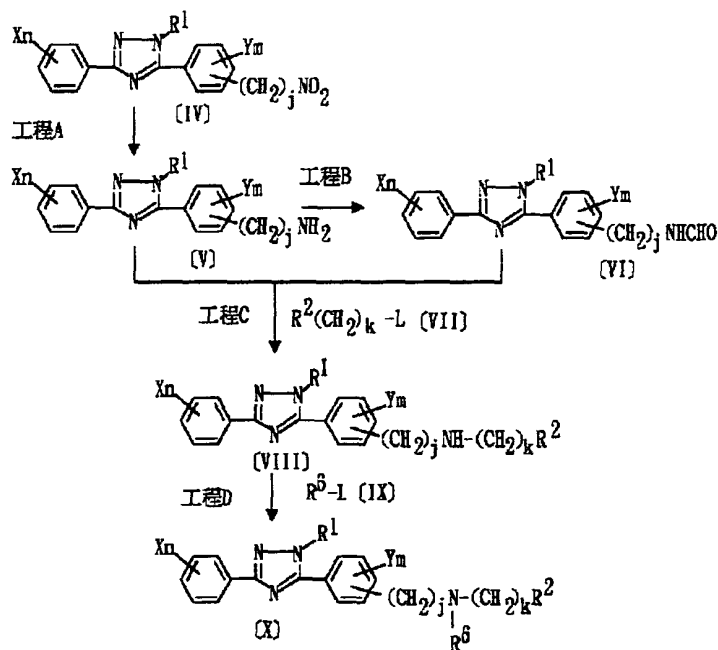
【0065】

製造法 2

製造法 2 において、一般式[V]、[VI]、[VIII]、[X]で表される化合物は一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0066】

【化 10】



【0067】

(式中、L はハロゲン原子、メタンスルホニルオキシ基または p-トルエンスルホニルオキシ基を示し、 $R^6$  はアルキル基またはシクロアルキル基を示し、 $R^1$ 、 $R^2$ 、X、Y、j、k、m、および n は前記と同じ意味を示す。)

製造法 2 の工程 A では、一般式[IV]の化合物を溶媒中で還元剤と反応させることにより、一般式[V]で表される本発明化合物を得ることができる。

between usually 30 min~5 hours.

【0064】

embodiment of this reaction is stated in for example Bulletin of the Chemical Society of Japan (Bulletin of the Chemical Society of Japan (0009 - 2673, BCSJA )) Vol.56、 p.545 (1983).

【0065】

production method 2

In production method 2, General Formula {V }, {VI }, {VIII }, compound which is displayed with {X } is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I }.

【0066】

[Chemical Formula 10]

【0067】

(In Formula, L shows halogen atom、 methane sulfonyloxy group or p- toluene sulfonyloxy group,  $R^6$  shows alkyl group or cycloalkyl group,  $R^1$ 、  $R^2$ 、 X、 Y、 j、 k、 m、 and n show same meanings as description above. )

With step A of production method 2, the compound of this invention which is displayed compound of General Formula {IV } with General Formula {V } by reacting with reductant in the solvent, can be acquired.



【0068】

還元剤は、スズ、鉄等の金属類、塩化第一スズ等の金属塩類等が使用できる。

溶媒は、塩酸、酢酸、水またはエタノールなどのアルコール類が使用できる。

【0069】

還元剤の量は、一般式〔IV〕の化合物 1 モルに対し 1.0~10 倍が好ましい。

【0070】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できるが、0 deg C~50 deg C で行なうのが好ましい。

反応時間は 30 分~8 時間の間である。

【0071】

工程 B においては、式〔V〕で表される化合物をホルミル化剤と反応させることにより式〔VI〕で表される本発明化合物を得ることができる。

ホルミル化剤は、例えば蟻酸を用いることができる。

【0072】

ホルミル化剤の使用量は一般式〔V〕で表される化合物 1 モルに対し、1.0~50 倍が好ましい。

【0073】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度であるが、40 deg C~沸点の間が好ましい。

【0074】

工程 C では、一般式〔V〕または一般式〔VI〕で表される化合物と一般式〔VII〕で表される化合物を塩基の存在下、不活性溶媒中で反応させることにより、一般式〔VIII〕で表される本発明化合物を得ることができる。

【0075】

ここで使用できる塩基としては、水素化ナトリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等があげられる。

【0076】

【0068】

tin, iron or other metals, tin (I) chloride or other metal salt etc can use reductant.

hydrochloric acid, acetic acid, water or ethanol or other alcohols can use solvent.

【0069】

As for quantity of reductant, 1.0 - 10 times are desirable vis-a-vis compound 1 mole of General Formula {IV }.

【0070】

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C, but it is desirable to do with 0 deg C~50 deg C.

reaction time is between 30 min~8-hour.

【0071】

Regarding step B, the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with Formula [V] with type [VI] by reacting with the formylation agent can be acquired.

formylation agent can use for example formic acid.

【0072】

As for amount used of formylation agent 1.0 - 50 times are desirable vis-a-vis compound 1 mole which is displayed with General Formula {V }.

【0073】

reaction temperature is temperature of option between boiling point of solvent from 0 deg C, but between of 40 deg C~boiling point is desirable.

【0074】

With step C, General Formula {V } or the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with General Formula [VI] and compound which is displayed with General Formula {VII } with General Formula {VIII } by reacting under existing of the base and in inert solvent, is obtained, it is dense る.

【0075】

You can list sodium hydride, sodium hydroxide, potassium hydroxide, sodium carbonate, potassium carbonate or other inorganic base, potassium t- butoxide or other alkali metal alkoxide etc as base which can be used here.

【0076】

ここで使用できる溶媒としては、メタノール、エタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエンの芳香族炭化水素類、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0077】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間で任意であるが、好ましくは 50 deg C から溶媒の沸点である。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で任意である。

【0078】

工程 D では、一般式[VIII]で表される化合物と一般式[IX]で表される化合物を塩基の存在下、不活性溶媒中で反応させることにより、一般式[X]で表される本発明化合物を得ることができる。

【0079】

ここで使用できる塩基としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、水素化ナトリウム、炭酸カリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等があげられる。

【0080】

ここで使用できる溶媒としては、メタノール、エタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0081】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で任意である。

【0082】

製造法 3

製造法 3 において、一般式[V]、[XII]、[XIII]

aromatic hydrocarbons, tetrahydrofuran, 1, 4- dioxane, 1, 2- dimethoxyethane or other ethers, chloroform, 1,2- dichloroethane or other halogenated hydrocarbons, N, N- di methylformamide, N, N- dimethylacetamide or other amides, dimethyl sulfoxide or other sulfoxide, of methanol, ethanol or other alcohols, benzene, toluene and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

【0077】

reaction temperature from 0 deg C is option between boiling point of solvent, but it is a boiling point of solvent from preferably 50 deg C.

reaction time is option between 1 hour~4 0 hour.

【0078】

With step D, the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with General Formula {VIII} and compound which is displayed with the General Formula {IX} with General Formula {X} by reacting under existing of base and in inert solvent, can be acquired.

【0079】

You can list sodium hydroxide, potassium hydroxide, sodium carbonate, sodium hydride, potassium carbonate or other inorganic base, potassium t- butoxide or other alkali metal alkoxide etc as base which can be used here.

【0080】

methanol, ethanol or other alcohols, benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, tetrahydrofuran, 1, 4- dioxane, 1, 2- dimethoxyethane or other ethers, chloroform, 1, 2- dichloroethane or other halogenated hydrocarbons, N, N- dimethylformamide, N, N- dimethylacetamide or other amides, dimethyl sulfoxide or other sulfoxide, and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

【0081】

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

reaction time is option between 1 hour~4 0 hour.

【0082】

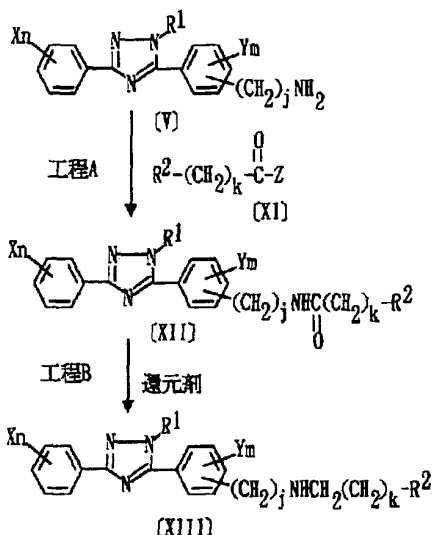
production method 3

In production method 3, General Formula {V}, {XII},

で表される化合物は一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0083】

【化 11】



【0084】

(式中、Z はハロゲン原子または 1-イミダゾリル基を示し、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、X、Y、j、k、m および n は前記と同じ意味を示す。)

製造法 3 の工程 A では、一般式[V]で表される化合物と一般式[XI]で表される化合物を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより、一般式[XII]で表される本発明化合物を得ることができる。

【0085】

ここで使用できる塩基としては、トリエチルアミン、ピリジン、4-N,N-ジメチルアミノピリジン等の有機塩基、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等の金属アルコキシド等があげられる。

【0086】

ここで使用できる溶媒としては、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエ

compound which is displayed with the {XIII} is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I}.

【0083】

[Chemical Formula 11]

【0084】

(In Formula, halogen atom or 1-imidazolyl group it shows Z, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, X, Y, j, k, m and n shows same meaning as description above.)

With step A of production method 3, the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with General Formula {V} and compound which is displayed with General Formula {XI} with General Formula {XII} by reacting under existing of the base and in inert solvent, can be acquired.

【0085】

You can list, sodium carbonate, potassium carbonate, sodium hydride or other inorganic base, potassium t-butoxide or other metal alkoxide etc such as triethylamine, pyridine, 4-N,N-dimethylamino pyridine or other organic base, sodium hydroxide, potassium hydroxide as base which can be used here.

【0086】

acetone, methylethyl ketone or other ketones, methyl acetate, ethylacetate or other esters, benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, diethyl ether, tetrahydrofuran, 1,4-dioxane, 1,2-dimethoxyethane or other ethers, chloroform, 1,2-dichloroethane or other halogenated hydrocarbons, N,N-dimethylformamide, N,N-

タン等のハロゲン化炭化水素類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0087】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 30 分~40 時間の間で設定できる。

【0088】

工程 B では、一般式[XII]で表される化合物を不活性溶媒中、還元剤を作用させるとにより一般式[XIII]で表される本発明化合物を得ることができる。

ここで使用できる還元剤として水素化リチウムアルミニウム等の金属水素化物を用いることができる。

ここで使用できる溶媒としてはジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類を用いることができる。

【0089】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できるが、好ましくは 0 deg C~50 deg C で行う。

反応時間は 30 分~20 時間の間で設定できる。

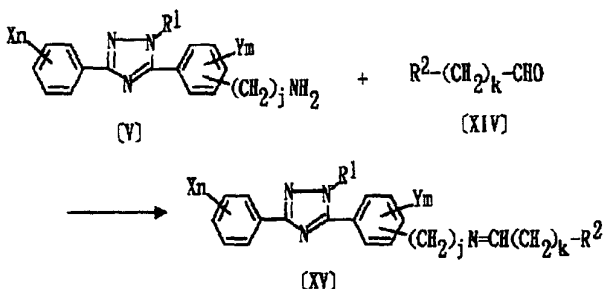
【0090】

製造法 4

製造法 4において、一般式[V]および[XV]で表される化合物は一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0091】

【化 12】



dimethylacetamide or other amides, dimethyl sulfoxide or other sulfoxide and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0087]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

It can set reaction time between 30 min~40 hour.

[0088]

With step B, when compound which is displayed with General Formula {XII} in inert solvent, reductant it operates the compound of this invention which is displayed with the General Formula {XIII} by can be acquired.

lithium aluminum hydride or other metal hydrogenation product is used as reductant which can be used here but it is possible.

diethyl ether, tetrahydrofuran or other ethers can be used as solvent which can be used here.

[0089]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C, but it does with preferably 0 deg C~50 deg C.

It can set reaction time between 30 min~20 hour.

[0090]

production method 4

In production method 4, General Formula {V} and compound which is displayed with the {XV} is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I}.

[0091]

[Chemical Formula 12]

[0092]

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $j$ 、 $k$ 、 $m$  および  $n$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 4 において一般式 [V] で表される化合物と一般式 [XIV] で表される化合物を触媒量のルイス酸の存在下、溶媒中あるいは無溶媒で反応させることにより、一般式 [XV] の本発明化合物を得ることができる。

[0093]

ここで使用できるルイス酸としては、四塩化チタン、塩化亜鉛、三フッ化ホウ素、ベンゼンスルホン酸、*p*-トルエンスルホン酸等が挙げられる。

[0094]

ここで使用できる溶媒としては、メタノール、エタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

[0095]

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で設定できる。

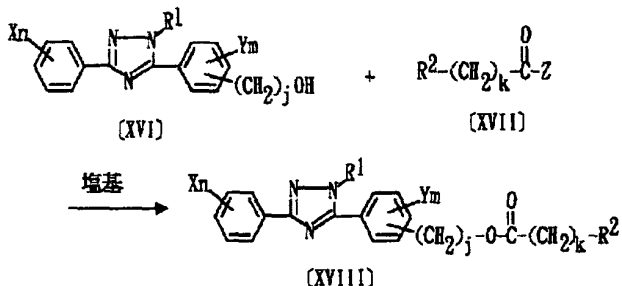
[0096]

製造法 5

製造法 5 において、一般式 [XVIII] で表される化合物は一般式 [I] で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

[0097]

[化 13]



[0098]

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $Z$ 、 $j$ 、 $k$ 、 $m$  および  $n$  は前記

[0092]

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $j$ 、 $k$ 、 $m$  and  $n$  shows same meaning as description above. )

the compound of this invention of General Formula {XV} can be acquired compound which is displayed with General Formula {V} in production method 4 and compound which is displayed with General Formula {XIV} by reacting with under existing of Lewis acid of the catalyst amount, in or solventless solvent.

[0093]

You can list titanium tetrachloride, zinc chloride, boron trifluoride, benzenesulfonic acid, *p*-toluene sulfonic acid etc as Lewis acid which can be used here.

[0094]

methanol, ethanol or other alcohols, benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, tetrahydrofuran, 1, 4-dioxane, 1, 2- dimethoxyethane or other ethers and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0095]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

It can set reaction time between 1 hour~4 0 hour.

[0096]

production method 5

In production method 5, compound which is displayed with General Formula {XVIII} is the the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I}.

[0097]

[Chemical Formula 13]

[0098]

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $Z$ 、 $j$ 、 $k$ 、 $m$  and  $n$  shows same

と同じ意味を示す。)

製造法 5 では、一般式[XVI]で表される化合物と一般式[XVII]で表される化合物を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより、一般式[XVIII]で表される本発明化合物を得ることができる。

ここで使用できる塩基としては、トリエチルアミン、ピリジン、4-N,N-ジメチルアミノピリジン等の有機塩基、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基等があげられる。

[0099]

ここで使用できる溶媒としては、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン、ジグリム等のエーテル類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

[0100]

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間から 40 時間の間で設定できる。

[0101]

製造法 6

製造法 6 において、一般式[XX]で表される化合物は一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

[0102]

[化 14]

meaning as description above. )

With production method 5, the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with General Formula {XVI} and compound which is displayed with the General Formula {XVII} with General Formula {XVIII} by reacting under existing of base and in inert solvent, can be acquired.

You can list triethylamine, pyridine, 4- N, N- dimethylamino pyridine or other organic base, sodium hydroxide, potassium hydroxide, sodium carbonate, potassium carbonate, sodium hydride or other inorganic base etc as base which can be used here.

[0099]

acetone, methylethyl ketone or other ketones and benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, diethyl ether, tetrahydrofuran, 1, 4- dioxane, 1, 2- dimethoxyethane, diglyme or other ethers, methyl acetate, ethylacetate or other esters, chloroform, 1, 2- dichloroethane or other halogenated hydrocarbons, N, N- dimethylformamide, N, N- dimethylacetamide or other amides, dimethyl sulfoxide or other sulfoxide and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0100]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

From 1 hour it can set reaction time between 40 hour.

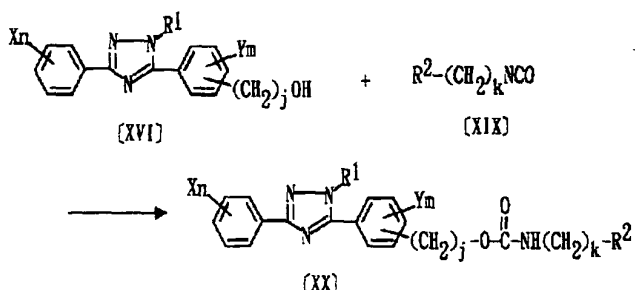
[0101]

production method 6

In production method 6, compound which is displayed with General Formula {XX} is the the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I}.

[0102]

[Chemical Formula 14]



【0103】

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $j$ 、 $k$ 、 $m$  および  $n$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 6 では一般式〔XVI〕で表される化合物と一般式〔XIX〕で表される化合物を触媒非存在下または触媒量の酸または塩基存在下、不活性溶媒中あるいは無溶媒で反応させることにより、一般式〔XX〕で表される本発明化合物を得ることができる。

ここで使用できる酸としては、塩酸、塩化アルミニウム、三フッ化ホウ素エーテラート等が挙げられ、塩基としてはトリエチルアミン、ピリジン、酢酸ナトリウム等が挙げられる。

【0104】

ここで使用できる溶媒としては、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、ジクロロメタン、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0105】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で設定できる。

【0106】

製造法 7

製造法 7 において、一般式〔XXIII〕で表される化合物は一般式〔I〕で表される化合物に含まれる本発明化合物である

【0107】

[0103]

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $j$ 、 $k$ 、 $m$  and  $n$  shows same meaning as description above. )

With production method 6 the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with General Formula {XVI} and compound which is displayed with the General Formula {XIX} with General Formula {XX} by reacting with under catalyst absence or under acid or base existing of catalyst amount, in or solventless inert solvent, can be acquired.

You can list hydrochloric acid, aluminum chloride, boron trifluoride etherate etc as acid which can be used here, you can list triethylamine, pyridine, sodium acetate etc as base.

[0104]

benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, diethyl ether, tetrahydrofuran, 1, 4- dioxane, 1, 2- dimethoxyethane or other ethers, dichloromethane, chloroform or other hydrocarbon halide and acetone, methylethyl ketone or other ketones, methyl acetate, ethylacetate or other esters and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0105]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

It can set reaction time between 1 hour~4 0 hour.

[0106]

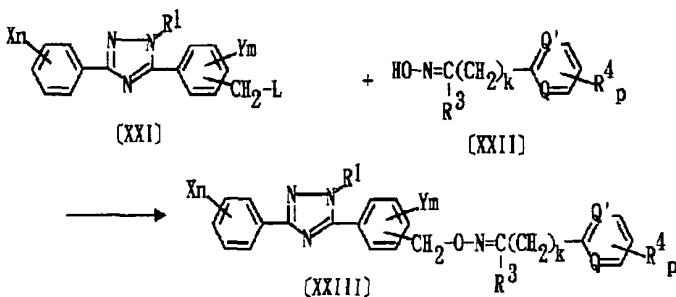
production method 7

In production method 7, compound which is displayed with General Formula {XXIII} being a the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I} it is

[0107]

【化 15】

[Chemical Formula 15]



【0108】

(式中、 $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $L$ 、 $Q$ 、 $Q'$ 、 $k$ 、 $m$ 、 $n$  および  $p$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 7 では、一般式 (XXI) で表される化合物と一般式 (XXII) で表される化合物を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより、一般式 (XXIII) で表せる本発明化合物を得ることができる。

【0109】

ここで使用できる塩基としては水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類等があげられる。

【0110】

ここで使用できる溶媒としては、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン、ジグリム等のエーテル類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、 $N,N$ -ジメチルホルムアミド、 $N,N$ -ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0111】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間から 40 時間の間で設定できる。

【0112】

【0108】

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $L$ 、 $Q$ 、 $Q'$ 、 $k$ 、 $m$ 、 $n$  and  $p$  show same meaning as description above. )

With production method 7, the compound of this invention which displays compound which is displayed with General Formula {XXI} and compound which is displayed with General Formula {XXII} with General Formula {XXIII} by reacting under existing of base and in the inert solvent, can be acquired.

【0109】

You can list sodium hydroxide, potassium hydroxide, sodium carbonate, potassium carbonate, sodium hydride or other inorganic base, potassium t-butoxide or other alkali metal alkoxides etc as base which can be used here.

【0110】

acetone, methylethyl ketone or other ketones and benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, diethyl ether, tetrahydrofuran, 1,4-dioxane, 1,2-dimethoxyethane, diglyme or other ethers, methyl acetate, ethylacetate or other esters, chloroform, 1,2-dichloroethane or other halogenated hydrocarbons,  $N,N$ -dimethylformamide,  $N,N$ -dimethylacetamide or other amides, dimethyl sulfoxide or other sulfoxide and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

【0111】

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

From 1 hour it can set reaction time between 40 hour.

【0112】

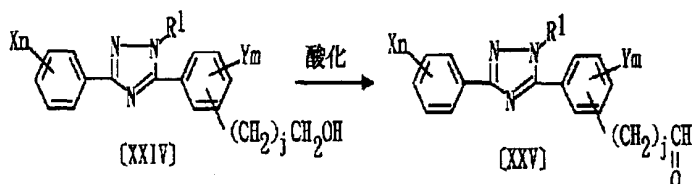


## 製造法 8

製造法 8 において一般式[XXV]で表される化合物は、一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0113】

【化 16】



【0114】

(式中、 $R^1$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $j$ 、 $m$  および  $n$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 8 では一般式[XXIV]で表される化合物を、酸化することにより、一般式[XXV]で表される本発明化合物を得ることができる。

【0115】

ここであげられる酸化の方法としては、クロロクロム酸ピリジニウム、ニクロム酸ピリジニウム等のクロム酸塩類を用いる方法、二酸化マンガンを用いる方法、スワン酸化に代表されるジメチルスルホキシドを用いる方法等があげられる。

【0116】

## 製造法 9

製造法 9 において一般式[XXV]および[XXVII]で表される化合物は、一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0117】

【化 17】

## production method 8

compound which is displayed with General Formula {XXV} in production method 8 is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I}.

【0113】

[Chemical Formula 16]

【0114】

(In Formula,  $R^1$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $j$ 、 $m$  and  $n$  shows same meaning as description above.)

the compound of this invention which is displayed with General Formula {XXV} with production method 8 by the oxidation doing compound which is displayed with General Formula {XXIV}, can beacquired.

【0115】

Method of using pyridinium chlorochromate, pyridinium dichromate or other chromate as method of oxidation which is lifted here. Method of using manganese dioxide. You can list method etc which uses dimethyl sulfoxide which is represented in Swan oxidation.

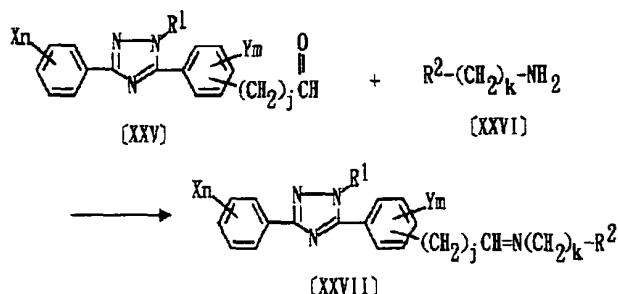
【0116】

## production method 9

General Formula {XXV} and compound which is displayed with {XXVII} is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I} in production method 9.

【0117】

[Chemical Formula 17]



【0118】

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $k$ 、 $j$ 、 $m$ 、および  $n$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 9 において一般式〔XXV〕で表される化合物と一般式〔XXVI〕で表される化合物を触媒量のルイス酸存在下、溶媒中あるいは無溶媒で反応させることにより、一般式〔XXVII〕で表される本発明化合物を得ることができる。

【0119】

ここで使用できるルイス酸としては、四塩化チタン、塩化亜鉛、三フッ化ホウ素、ベンゼンスルホン酸、*p*-トルエンスルホン酸等が挙げられる。

【0120】

ここで使用できる溶媒としては、メタノール、エタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0121】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で設定できる。

【0122】

製造法 10

製造法 10 において一般式〔XII〕および〔XXVIII〕で表される化合物は、一般式〔I〕で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0123】

【化 18】

【0118】

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $k$ 、 $j$ 、 $m$ 、 and  $n$  show same meaning as description above. )

the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with the General Formula {XXV } in production method 9 and compound which is displayed with General Formula {XXVI } with General Formula {XXVII } by reacting with under Lewis acid existing of the catalyst amount, in or solventless solvent, can be acquired.

【0119】

You can list titanium tetrachloride, zinc chloride, boron trifluoride, benzenesulfonic acid, *p*-toluene sulfonic acid etc as Lewis acid which can be used here.

【0120】

methanol, ethanol or other alcohols, benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, tetrahydrofuran, 1, 4-dioxane, 1, 2- dimethoxyethane or other ethers and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

【0121】

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

It can set reaction time between 1 hour~4 0 hour.

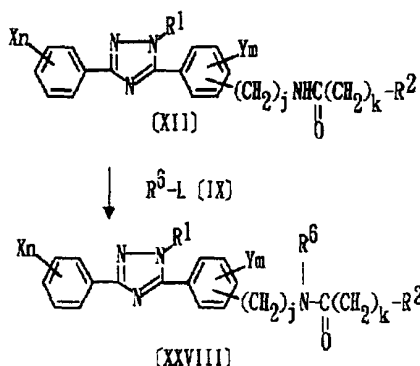
【0122】

production method 10

General Formula {XII } and compound which is displayed with {XXVIII } is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I } in production method 10.

【0123】

【Chemical Formula 18】



【0124】

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^6$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $L$ 、 $k$ 、 $j$ 、 $m$ 、および  $n$  は前記と同じ意味を示す。)

製造法 10 において一般式〔XII〕で表される化合物と一般式〔IX〕で表される化合物を塩基の存在下、不活性溶媒中で反応させることにより、一般式〔XXVIII〕で表される本発明化合物を得ることができる。

【0125】

ここで使用できる塩基としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、水素化ナトリウム、炭酸カリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等があげられる。

【0126】

ここで使用できる溶媒としては、メタノール、エタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、 $N,N$ -ジメチルホルムアミド、 $N,N$ -ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0127】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間~40 時間の間を設定できる。

【0128】

製造法 11

製造法 11 において、一般式〔V〕および〔XXIX〕

[0124]

(In Formula,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^6$ ,  $X$ ,  $Y$ ,  $L$ ,  $k$ ,  $j$ ,  $m$ , and  $n$  show same meaning as description above. )

the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with the General Formula {XII} in production method 10 and compound which is displayed with General Formula {IX} with General Formula {XXVIII} by reacting under existing of base and in inert solvent, can be acquired.

[0125]

You can list sodium hydroxide, potassium hydroxide, sodium carbonate, sodium hydride, potassium carbonate or other inorganic base, potassium t- butoxide or other alkali metal alkoxide etc as base which can be used here.

[0126]

methanol, ethanol or other alcohols, benzene, toluene or other aromatic hydrocarbons, tetrahydrofuran, 1, 4-dioxane, 1, 2- dimethoxyethane or other ethers, chloroform, 1, 2- dichloroethane or other halogenated hydrocarbons,  $N,N$ - dimethylformamide,  $N,N$ - dimethylacetamide or other amides, dimethyl sulfoxide or other sulfoxide, and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0127]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

reaction time can set between 1 hour~4 0 hour.

[0128]

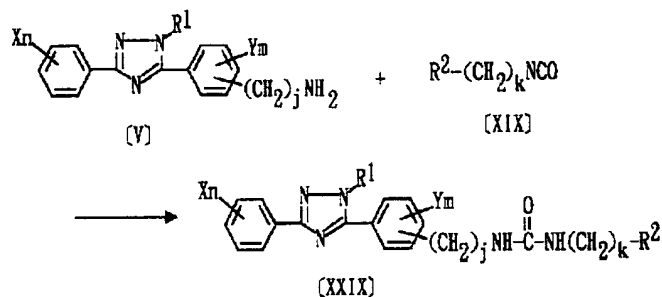
production method 11

In production method 11, General Formula {V} and

で表される化合物は一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である。

【0129】

【化 19】



【0130】

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、X、Y、j、k、m および n は前記と同じ意味を示す。)

製造法 11 では一般式[V]で表される化合物と一般式[XIX]で表される化合物を触媒非存在下または触媒量の酸または塩基存在下、不活性溶媒中あるいは無溶媒で反応させることにより、一般式[XXIX]で表される本発明化合物を得ることができる。

ここで使用できる酸としては、塩酸、塩化アルミニウム、三フッ化ホウ素エーテラート等が挙げられ、塩基としてはトリエチルアミン、ピリジン、酢酸ナトリウム等が挙げられる。

【0131】

ここで使用できる溶媒としては、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、ジクロロメタン、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0132】

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で任意である。

【0133】

製造法 12

compound which is displayed with the {XXIX} is the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I}.

[0129]

[Chemical Formula 19]

[0130]

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^2$ 、X、Y、j、k、m and n shows same meaning as description above. )

With production method 11 the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with General Formula {V} and compound which is displayed with the General Formula {XIX} with General Formula {XXIX} by reacting with under catalyst absence or under acid or base existing of catalyst amount, in or solventless inert solvent, can be acquired.

You can list hydrochloric acid、aluminum chloride、boron trifluoride etherate etc as acid which can be used here, you can list triethylamine、pyridine、sodium acetate etc as base.

[0131]

benzene、toluene or other aromatic hydrocarbons、diethyl ether、tetrahydrofuran、1,4- dioxane、1,2- dimethoxyethane or other ethers、dichloromethane、chloroform or other hydrocarbon halide and acetone、methylethyl ketone or other ketones、methyl acetate、ethylacetate or other esters and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0132]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

reaction time is option between 1 hour~40 hour.

[0133]

production method 12

製造法 12 において、一般式[XXX]で表される化合物は一般式[I]で表される化合物に含まれる本発明化合物である

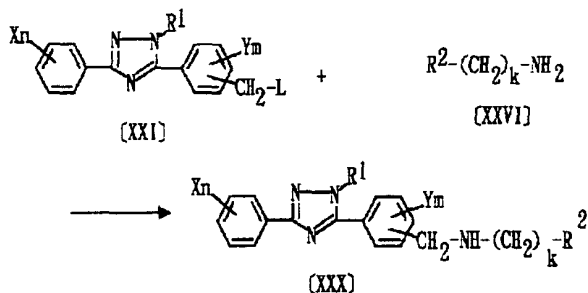
In production method 12, compound which is displayed with General Formula {XXX} being a the compound of this invention which is included in compound which is displayed with General Formula {I} it is

[0134]

[0134]

[化 20]

[Chemical Formula 20]



[0135]

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、X、Y、L、k、m および n は前記と同じ意味を示す。)

[0135]

(In Formula,  $R^1$ 、 $R^2$ 、X、Y、L、k、m and n shows same meaning as description above. )

製造法 12 では、一般式[XXI]で表される化合物と一般式[XXVI]で表される化合物を塩基の存在下、不活性な溶媒中で反応させることにより、一般式[XXX]で表せる本発明化合物を得ることができる。

With production method 12, the compound of this invention which displays compound which is displayed with General Formula {XXI} and compound which is displayed with General Formula {XXVI} with General Formula {XXX} by reacting under existing of base and in the inert solvent, can be acquired.

[0136]

ここで使用できる塩基としては水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類等があげられる。

[0136]

You can list sodium hydroxide、potassium hydroxide、sodium carbonate、potassium carbonate、sodium hydride or other inorganic base、potassium t- butoxide or other alkali metal alkoxides etc as base which can be used here.

[0137]

ここで使用できる溶媒としては、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン、ジグリム等のエーテル類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

[0137]

acetone、methylethyl ketone or other ketones and benzene、toluene or other aromatic hydrocarbons、diethyl ether、tetrahydrofuran、1, 4- dioxane、1, 2- dimethoxyethane、diglyme or other ethers、methyl acetate、ethylacetate or other esters、chloroform、1, 2- dichloroethane or other halogenated hydrocarbons、dimethylformamide、dimethylacetamide or other amides、dimethyl sulfoxide or other sulfoxide and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

[0138]

反応温度は 0 deg C から溶媒の沸点の間の任意の温度を設定できる。

[0138]

reaction temperature can set temperature of option between boiling point of the solvent from 0 deg C.

反応時間は 1 時間から 40 時間の間で設定できる。

【0139】

【実施例】

次に実施例をあげて本発明化合物の製造法並びに製剤法、用途を具体的に説明する。

製造例 1 5-(4-アミノフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール (化合物番号 24) の製造

36%濃塩酸 35ml に塩化第一スズニ水和物 (25.0g)を加え、完全に溶解するまで室温で撹拌した。

この混合物に撹拌下室温で 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-(4-ニトロフェニル)-1H-1,2,4-トリアゾール(11.5g)を加え、室温で 7 時間撹拌した。

反応終了後、10%水酸化ナトリウム水溶液で反応混合溶液を中和し、酢酸エチル 300ml を加えた。

有機層を水洗し無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下濃縮した。

残渣を酢酸エチル-ヘキサン混合溶媒から再結晶し、淡黄色粒状結晶の目的物(10.4g、融点 173.0~176.0 deg C)を得た。

From 1 hour it can set reaction time between 40 hour.

[0139]

[Working Example(s)]

Listing execution example next, you explain production method and formulation method, application of the compound of this invention concretely.

Production Example 1 5-(4-amino phenyl) - 3 - (2-chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 24 )

Until it melts in 36% concentrated hydrochloric acid 35 ml completely including tin (I ) chloride dihydrate (25.0 g ), it agitated with room temperature.

In this mixture under agitating with room temperature 7 hours it agitated with room temperature 3 - (2-chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-5- (4 -nitrophenyl ) - including 1 H-1,2, 4- triazole (11.5 g ).

After reaction termination, reaction mixture was neutralized with 10% sodium hydroxide water solution, ethylacetate 300 ml was added.

water wash it did organic layer and dried with anhydrous sodium sulfate, under vacuum concentrated.

residue recrystallization was done from mixed solvent of ethylacetate-hexane, object compound (10.4 g, melting point 173.0~176.0 deg C )of pale yellow granular crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl <sub>3</sub> 溶媒、δ 値)									
nmr data (60 MHz、 CDCl <sub>3</sub> solvent、 δ value )									
3. 97					(2H、	、 s)			
3.97					2 H、	s)			
4. 00					(3H、	、 s)			
4.00					3 H、	s)			
6. 00		7		50	(7H、	、 m)			
6.00		7		50	7 H、	m)			

【0140】

製造例 2 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ホルムアミドフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリア

[0140]

Production Example 2 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (4 -formamide phenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole

## ゾール(化合物番号 145)の製造

5-(4-アミノフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(4.0g)と90%蟻酸(100ml)の混合物を攪拌下5時間加熱還流した。

室温冷却後、溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、無色粒状結晶の目的物(4.1g、融点 76.0~81.0 deg C)を得た。

## production of (compound number 145)

5 - (4 -amino phenyl) - 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-1H-1,2,4- triazole (4.0 g) with mixture of 90% formic acid (100 ml) was done under agitating 5 hours heating and refluxing.

After room temperature cooling, solvent was removed under vacuum, residue was refined with silica gel column chromatography, object compound (4.1 g, melting point 76.0~81.0 deg C) of colorless granular crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)nmr data (60 MHz、CDCl<sub>3</sub> solvent、δ value)

4. 06					(3H、	s)				
4.06					3 H、	s)				
6. 87~7				. 87	(7H、	m)				
6.87 - 7				. 87	7 H、	m)				
8. 20					(1H、	s)				
8.20					1 H、	s)				
9. 37					(1H、	s)				
9.37					1 H、	s)				

【0141】

製造例 3 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-[4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルアミノ)フェニル]-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 66)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ホルムアミドフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(1.39g)、カリウム tert-ブトキシド(0.6g)、2-メタンサルホニル-5-トリフルオロメチルピリジン(1.00g)を N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)(10ml)に加え、攪拌下 60 deg C~70 deg C で5時間加熱した。

室温冷却後、反応混合物を水にあげ、酢酸エチル 200ml にて抽出し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、無色羽毛状結晶の目的物(0.80g、融点 171.0~173.0 deg C)を得た。

【0141】

Production Example 3 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-5- [4 - (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yl amino) phenyl] - production of 1 H-1,2, 4- triazole (compound number 66)

3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (4 -formamide phenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole (1.39 g), potassium t- butoxide (0.6 g), 2 -methane sulfonyl -5 -trifluoromethyl pyridine (1.00 g) in addition to N, N- dimethylformamide (DMF) (10 ml), under agitating 5 hours it heated with 60 deg C~70 deg C.

After room temperature cooling, you opened reaction mixture to water, extracted with ethylacetate 200 ml, after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography, object compound (0.80 g, melting point 171.0~173.0 deg C) of colorless feather crystal was acquired.

feathery crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl <sub>3</sub> 溶媒)				δ 値)	
60 MHz、CDCl <sub>3</sub> solvent nmr data				;de value)	
4. 07			(3H, s)		
4.07			(3 H,s )		
6. 60		8. 10	(11H, m)		
6.60		8.10	(11 H, m )		

[0142]

製造例 4 5-(2-クロロ-4-アミノフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 25)の製造

塩化第一スズニ水和物(20.3g)を 36%濃塩酸(30ml)に加え、完全に溶解するまで室温で撹拌した。

この混合物に 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(2-クロロ-4-ニトロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(11.0g)を加え室温で 3 時間撹拌した。

反応終了後、反応混合物に 10%水酸化ナトリウム水溶液を加えて反応溶液を中和し、酢酸エチル(300ml)を加え室温で 30 分撹拌した。

その混合溶液から酢酸エチル層を分取し、水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、黄褐色アメ状物質の目的物(8.5g、融点 51.0~55.0 deg C)を得た。

[0142]

Production Example 4 5-(2-chloro-4-amino phenyl) - 3 - (2-chloro-6-fluorophenyl) - 1 - methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 25)

tin (I) chloride dihydrate (20.3 g) in addition to 36% concentrated hydrochloric acid (30 ml ), until it meltscompletely, it agitated with room temperature.

In this mixture 3 hours it agitated with room temperature 3 - (2-chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (2-chloro-4- nitrophenyl) - 1-methyl-1H-1,2, 4- triazole including (11.0 g ).

After reaction termination, it neutralized reaction solution in reaction mixture including 10%sodium hydroxide water solution, 30 min it agitated with room temperature including the ethylacetate (300 ml ).

fraction collection it did ethyl acetate layer from mixed solution, after water wash, dried with anhydrous magnesium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , object compound (8.5 g、 melting point 51.0~55.0 deg C ) of yellow-brown syrupy substance was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDC				3溶媒、δ 値)	
60 MHz、CD C nmr data				3 solvent、;de value)	
3. 90			(3H, s)		
3.90			3 H, s)		
4. 23			(2H, s)		



4.23				2 H,	s)				
6. 30		7		60	(6H,	m)			
6.30		7		60	6 H,	m)			

## 【0143】

製造例 5 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(2-クロロ-4-ホルムアミドフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 144)の製造

5-(2-クロロ-4-アミノフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール (1.00g)と 90%蟻酸(10ml)の混合物を、1 時間加熱還流した。

反応終了後溶媒を減圧下留去し残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、黄白色粉末結晶の目的物(0.65g、融点 81.0~85.0 deg C)を得た。

## [0143]

Production Example 5 3-(2-chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (2-chloro-4- formamide phenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 144 )

5 - (2 -chloro-4- amino phenyl ) - 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole (1.00 g ) with mixture of 90% formic acid (10 ml ) was done, 1 hour heating and refluxing.

solvent after reaction termination was removed under vacuum and residue was refined with silica gel column chromatography , object compound (0.65 g、 melting point 81.0~85.0 deg C ) of yellowish white powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)

nmr data (60 MHz、 CDCl<sub>3</sub> solvent、 δ value )

3. 83					(3H,	s)			
3.83					3 H,	s)			
7. 00~7				. 60	(6H,	m)			
7.00 - 7				. 60	6 H,	m)			
8. 10					(1H,	s)			
8.10					1 H,	s)			
9. 17					(1H,	s)			
9.17					1 H,	s)			

## 【0144】

製造例 6 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[2-クロロ-4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 67)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(2-クロロ-4-ホルムアミドフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.50g)、カリウム tert-ブトキシド(0.18g)を DMF(10ml)に加え 50 deg C に加熱し溶解させ

## [0144]

Production Example 6 3-(2-chloro-6-fluorophenyl) - 5 - [2-chloro-4- (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yl amino ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 67 )

3 - It heated to 50 deg C (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (2 -chloro-4- formamide phenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole (0.50 g ) , potassium t- butoxide (0.18 g ) in addition to DMF (10 ml ) and melted.

た。

溶解後、2-メタンスルホニル-5-トリフルオロメチルピリジン(0.37g)を加え、140 deg C で 3 時間加熱撹拌した。

反応終了確認後、反応混合物を水にあげ酢酸エチル(200ml)で抽出し、水洗後無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、黄白色粉末結晶の目的物(0.50g, 融点 88.0~92.0 deg C)を得た。

(10 ml) and melted.

After melting, 2-methane sulfonyl — 5-trifluoromethyl including thepyridine (0.37 g), 3 hours heat and stir it did with 140 deg C.

After reaction termination verifying, you opened reaction mixture to water and extracted with ethylacetate (200 ml), dried with anhydrous magnesium sulfate after water wash.

solvent was removed under vacuum, residue which is acquired was refined with silica gel column chromatography, object compound (0.50 g, melting point 88.0~92.0 deg C) of yellowish white powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDC				3溶媒	δ 値)	
60 MHz、CD C nmr data				3 solvent	;de value)	
3. 83			(3H, s)			
3.83			(3 H,s )			
6. 50		8. 30	(10H, m			
6.50		8.30	10 H,m			

【0145】

製造例 7 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[2-クロロ-4-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 44)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(2-クロロ-4-アミノフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.50g)をDMF(10ml)に溶解させ、60%水素化ナトリウム(0.07g)を加え室温で30分撹拌した。

この混合物に 2,3-ジクロロ-5-トリフルオロメチルピリジン(0.35g)、p-トルエンスルフィン酸ナトリウム(0.13g)を加え 140 deg C にて3時間加熱した。

室温まで冷却した後、反応溶液を水にあげ、酢酸エチル(200ml)で抽出、5%塩酸洗浄後、無水硫酸マグネシウムにて乾燥し、溶媒を減圧下留去した。

残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、黄白色粉末状結晶の目的物(0.32g、融点 239.0~241.0 deg C)を得た。

[0145]

Production Example 7 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - [2 -chloro-4- (3 -chloro-5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yl amino ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 44 )

3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (2 -chloro-4- amino phenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole melting (0.50 g ) in DMF (10 ml ) , 30 min it agitated with room temperature including 60% sodium hydride (0.07 g ) .

In this mixture 3 hours it heated with 140 deg C 2 and 3 -dichloro-5-trifluoromethyl thepyridine (0.35 g ) , including p-toluene sodium sulfinate (0.13 g ) .

After cooling, you opened reaction solution to water to room temperature, extracted with ethylacetate (200 ml ) , 5% hydrochloric acid wash later, dried with anhydrous magnesium sulfate , under vacuum removed solvent.

residue was refined with silica gel column chromatography , object compound (0.32 g、 melting point 239.0~241.0 deg C ) of yellowish white powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl <sub>3</sub> 溶媒				δ 値)	
60 MHz、CDCl <sub>3</sub> solvent nmr data				;de value)	

3. 98				(3H,	s)		
3.98				3 H,	s)		
7. 00		8. 50		(9H,	m)		
7.00		8.50		9 H,	m)		

【0146】

製造例 8 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルベンゾイルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 153)の製造

5-(4-アミノフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.91g)、2-クロロ-4-トリフルオロメチル安息香酸クロリド(0.80g)、トリエチルアミン(0.50g)をトルエン(30ml)に溶解し、60 deg Cにて3時間加熱撹拌した。

室温に冷却後、トルエン(200ml)を加えて抽出し、有機層を5%塩酸で洗浄、水洗した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣を酢酸エチル-ヘキサンの混合溶媒から再結晶し、無色羽毛状結晶の目的物(1.37g、融点 204.0~205.0 deg C)を得た。

【0146】

Production Example 8 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-[4-(2-chloro-4-trifluoromethyl benzoyl amino) phenyl]-1-methyl-1H-1,2,4-triazole production of (compound number 153)

5-(4-amino phenyl)-3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole (0.91 g), 2-chloro-4-trifluoromethyl benzoic acid chloride (0.80 g), it melted triethylamine (0.50 g) in toluene (30 ml), 3 hours heat and stir did with 60 deg C.

After cooling, it extracted in room temperature including toluene (200 ml), washed organic layer with 5% hydrochloric acid, water wash after doing, it dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue recrystallization was done from mixed solvent of ethylacetate-hexane, object compound (1.37 g, melting point 204.0~205.0 deg C) of colorless feathery crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)nmr data (60 MHz、CDCl<sub>3</sub><SB>3</SB> solvent、;de value )

4. 04				(3H, s)		
4.04				(3 H, s)		
6. 90~7		. 90		(10H, m)		
6.90 - 7		. 90		(10 H, m)		
10. 13				(1H, s)		
10.13				(1 H, s)		

【0147】

製造例 9 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-{4-[N-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルベンゾイル)-N-メチルアミノ]フェニル}-1-メチル

【0147】

Production Example 9 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-{4-[N-(2-chloro-4-trifluoromethyl benzoyl)-N-methylamino] phenyl}-1-methyl-1H-1,2,4-triazole production of

-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 161)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルベンゾイルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.96g)をDMF(50ml)に溶解し、60%水素化ナトリウム(0.10g)を室温で加えた。

水素ガスの発生が終了した後、ヨウ化メチル(1.0g)を加え 60 deg C で 5 時間加熱撹拌した。

室温に冷却後、反応混合物を水にあげ、酢酸エチル 200ml で抽出し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、酢酸エチル-ヘキサンの混合溶媒から再結晶することによって、無色粉末状結晶の目的物(0.58g、融点 221.0~222.0 deg C)を得た。

(compound number 161)

3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - [4 - (2 -chloro-4-trifluoromethyl benzoyl amino ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2,4- triazole (0.96 g ) was melted in DMF (50 ml ) , 60% sodium hydride (0.10 g ) was added with room temperature.

After occurrence of hydrogen gas ends, 5 hours heat and stir it did with 60 deg C including methyl iodide (1.0 g ) .

After cooling, you opened reaction mixture to water in room temperature, extracted with ethylacetate 200 ml, after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , by fact that recrystallization it does, object compound (0.58 g、 melting point 221.0~222.0 deg C ) of colorless powder crystal was acquired from mixed solvent of ethylacetate-hexane.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、 $\delta$  値)

nmr data (60 MHz、 CDCl<sub>3</sub> solvent、  $\delta$  value )

3. 49					(3H、s)		
3.49					(3 H、s )		
3. 97					(3H、s)		
3.97					(3 H、s )		
6. 90		7		80	(10H、m)		
6.90		7		80	(10 H、m )		

【0148】

製造例 10 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(4-トリフルオロメチルベンゾイルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 156)の製造 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-アミノフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.50g)、トリエチルアミン(0.20g)をトルエン(20ml)に溶解した。

この混合物に、氷冷下、4-トリフルオロメチルベンゾイルクロリド(0.40g)を滴下し、室温にて 3 時間撹拌した。

反応溶液を水洗し無水硫酸マグネシウムにて乾燥後、溶媒を減圧下留去した。

【0148】

Production Example 10 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - [4 - (4 -trifluoromethyl benzoyl amino ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2,4- triazole production 3 of (compound number 156 ) - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (4 -amino phenyl) - 1 -methyl-1H-1,2,4- triazole (0.50 g ) , triethylamine (0.20 g ) was melted in toluene (20 ml ) .

It dripped under ice cooling、4- trifluoromethyl benzoyl chloride (0.40 g ) to this mixture, 3 hours agitated with the room temperature .

reaction solution was done water wash and after drying, solvent under the vacuum was removed with anhydrous magnesium sulfate .

残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、無色粒状結晶の目的物(0.67g、融点 197.0~200.0 deg C)を得た。

residue was refined with silica gel column chromatography , object compound (0.67 g、melting point 197.0~200.0 deg C ) of colorless granular crystal wasacquired.

NMRデータ(60MHz、CDC					3溶媒、δ 値)			
60 MHz、CD C nmr data					3 solvent、;de value)			
3. 97				(3H, s)				
3.97				(3 H,s)				
6. 80~8. 00				(11H, m)				
6.80 - 8.00				(11 H,m)				
9. 57				(1H, s)				
9.57				(1 H,s)				

【0149】

[0149]

製造例 11 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(4-トリフルオロメチルベンジルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 131)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(4-トリフルオロメチルベンゾイルアミノ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.67g)をジエチルエーテル(20ml)に加え、室温で攪拌し溶解した。

この混合物に水素化リチウムアルミニウム(0.06g)のジエチルエーテルけん濁液(10ml)を室温で滴下し、滴下終了後室温で 3 時間攪拌した。

反応終了確認後、反応混合物に酢酸エチルを少量加え、室温で 30 分攪拌後、反応混合物に水を加えエーテル抽出(200ml)し、水洗後無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、乳白色粉末結晶の目的物(0.47g、融点 157~162 deg C)を得た。

Production Example 11 3-(2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - [4 - (4 -trifluoromethyl benzylamino ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 131 )

3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - [4 - (4 -trifluoromethyl benzoyl amino ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole (0.67 g ) in addition to diethyl ether (20 ml ) , itagitated under room temperature and melted.

In this mixture it dripped diethyl ether suspension liquid (10 ml ) of lithium aluminum hydride (0.06 g ) with room temperature,3 hours agitated with room temperature after end of dropping addition.

After reaction termination verifying, trace it added ethylacetate to reaction mixture, with room temperature 30 min agitation later, ether extraction (200 ml ) it made reaction mixture including water, dried with anhydrous magnesium sulfate after water wash.

solvent was removed under vacuum, residue which is acquired wasrefined with silica gel column chromatography , object compound (0.47 g、melting point 157~162 deg C ) of milky white powder crystal wasacquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl3溶媒、δ 値)								
nmr data (60 MHz、CDCl<SB>3</SB> solvent、;de value )								
3. 97					(3H, s)			

3.97					(3 H, s)			
4. 45					(2H, d)			
4.45					(2 H, d)			
4. 78					(1H, t)			
4.78					(1 H, t)			
6. 50		8		00	(11 H, m)			
6.50		8		00	(11 H, m)			

【0150】

製造例 12 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-[4-(4-トリフルオロメチルベンジリデンアミノ)フェニル]-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 351)の製造 5-(4-アミノフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール (1.0g)、4-トリフルオロメチルベンズアルデヒド (0.8g)、p-トルエンスルホン酸(0.1g)をトルエン (300ml)に加え、撹拌しながら 5 時間加熱還流した。

室温冷却後、有機層を 5%塩酸で洗浄し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、アセトン-ヘキサン混合溶媒から再結晶することによって、淡黄色プリズム状結晶の目的物(0.65g、融点 126.0~128.0 deg C)を得た。

【0150】

Production Example 12 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-1-methyl-5-[4-(4-trifluoromethyl benzilidene amino)phenyl]-production 5 of 1 H-1,2,4- triazole (compound number 351) - (4-amino phenyl) - 3 - (2-chloro-6-fluorophenyl)-1-methyl-1H-1,2,4- triazole (1.0 g), 4-trifluoromethyl benzaldehyde (0.8 g), p-toluenesulfonic acid (0.1 g) in addition to toluene (300 ml), while agitating, 5 hours heating and refluxing it did.

After room temperature cooling, you washed organic layer with 5% hydrochloric acid, after the water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography, by fact that recrystallization it does, object compound (0.65 g, melting point 126.0~128.0 deg C) of pale yellow prism crystal was acquired from mixed solvent of acetone-hexane.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)nmr data (60 MHz、CDCl<sub>3</sub> solvent、δ value)

4. 07					(3H, s)			
4.07					(3 H, s)			
7. 20~8. 10					(11H, m)			
7.20 - 8.10					(11 H, m)			
8. 47					(1H, s)			

8.47				(1 H, s)		
------	--	--	--	----------	--	--

【0151】

製造例 13 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[3-クロロ-4-(2-フルオロ-4-トリフルオロメチルベンゾイルオキシメチル)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 300)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(3-クロロ-4-ヒドロキシメチルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.50g)、ピリジン(0.13g)をベンゼン 20ml に溶解し、2-フルオロ-4-トリフルオロメチルベンゾイルクロライド(0.34g)のベンゼン 10ml 溶液を室温で滴下し、室温で 5 時間撹拌した。

反応溶液を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、白色粉末の目的物(0.62g、融点 105.0~110.0 deg C)を得た。

【0151】

Production Example 13 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-[3-chloro-4-(2-fluoro-4-trifluoromethyl benzoyl oxy methyl) phenyl]-1-methyl-1H-1,2,4-triazole production of (compound number 300)

3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-(3-chloro-4-hydroxymethyl phenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole (0.50 g), it melted pyridine (0.13 g) in benzene 20 ml, 2-fluoro-4-trifluoromethyl benzoyl chloride dripped benzene 10 ml solution of (0.34 g) with room temperature, 5 hours agitated with room temperature.

reaction solution after water wash, was dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography, object compound (0.62 g, melting point 105.0~110.0 deg C) of white powder was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)nmr data (60 MHz, CDCl<sub>3</sub> solvent, δ value)

4.	10		(3H、	s)		
4.	10		3 H、	s)		
5.	57		(2H、	s)		
5.	57		2 H、	s)		
7.	90	~8. 20	(9H、	m)		
7.	90	- 8.20	9 H、	m)		

【0152】

製造例 14 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-{4-[N-(4-トリフルオロメトキシフェニル)カルバモイル]オキシフェニル}-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 212)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ヒドロキシフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.76g)、4-トリフルオロメトキシフェニルイソシアナート(0.60g)をテトラヒドロフラン(10ml)に溶解し、トリエチルアミン 3 滴を加え、撹拌しながら 30 時間加熱還流した。

室温冷却後、酢酸エチル(200ml)を加え、有機層を 5%水酸化ナトリウム水溶液で洗浄し、水洗

【0152】

Production Example 14 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-1-methyl-5-{4-[N-(4-trifluoromethoxy phenyl) carbamoyl] oxy phenyl}-1H-1,2,4-triazole (compound number 212)

3-While (2-chloro-6-fluorophenyl)-5-(4-hydroxyphenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole (0.76 g), 4-trifluoromethoxy melting phenyl isocyanate (0.60 g) in tetrahydrofuran (10 ml), agitating including triethylamine 3 drop, 30 hour heating and refluxing it did.

After room temperature cooling, including ethylacetate (200 ml), you washed organic layer with 5% sodium hydroxide

後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、淡黄色粉末状結晶の目的物(0.38g、融点 138.0~140.5 deg C)を得た。

water solution, after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography, object compound (0.38 g, melting point 138.0~140.5 deg C) of pale yellow powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、 $\delta$  値)

nmr data (60 MHz、CDCl<sub>3</sub> solvent、 $\delta$  value)

4. 07					(3H, s)		
4.07					(3 H, s)		
7. 00~7			. 80		(11H, m)		
7.00 - 7			. 80		(11 H, m)		
9. 77					(1H, s)		
9.77					(1 H, s)		

[0153]

製造例 15 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルベンゾイルオキシ)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 252)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ヒドロキシフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.52g)、2-クロロ-4-トリフルオロメチルベンゾイルクロリド(0.42g)、トリエチルアミン(0.2g)をベンゼン(10ml)に溶解し4時間加熱還流した。

室温冷却後、酢酸エチル(200ml)を加え、有機層を5%水酸化ナトリウム水溶液で洗浄し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、得られた粗結晶をヘキサンで洗浄し、無色粒状結晶の目的物(0.62g、融点 131.0~135.0 deg C)を得た。

NMR データ(60MHz、CDCl<sub>3</sub> 溶媒、 $\delta$  値)

4.07 (3H, s)

6.90~8.20 (10H, m)

[0154]

[0153]

Production Example 15 3-(2-chloro-6-fluorophenyl) - 5 - [4 - (2-chloro-4-trifluoromethyl benzoyl oxy) phenyl] - 1-methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 252)

3 - (2-chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (4-hydroxyphenyl) - 1-methyl-1H-1,2, 4- triazole (0.52 g), 2-chloro-4-trifluoromethyl benzoyl chloride (0.42 g), it melted triethylamine (0.2 g) in benzene (10 ml) and 4 hours heating and refluxing did.

After room temperature cooling, including ethylacetate (200 ml), you washed organic layer with 5% sodium hydroxide water solution, after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography, crude crystal which is acquired was washed with hexane, the object compound (0.62 g, melting point 131.0~135.0 deg C) of colorless granular crystal was acquired.

nmr data (60 MHz、CDCl<sub>3</sub> solvent、 $\delta$  value)

4.07 (3 H, s)

6.90 - 8.20 (10 H, m)

[0154]



製造例 16 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルアミノメチル)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 111)の製造

3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-(4-メチルフェニル)-1H-1,2,4-トリアゾール(3.20g)、N-ブromoコハク酸イミド(2.40g)、アゾビスイソブチロニトリル(50mg)を四塩化炭素(100ml)に加え、1時間加熱還流した。

室温冷却後、不溶物を濾過し、濾液を水洗し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

溶媒を減圧留去することにより 5-(4-ブromoメチルフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの粗生成物を得た。

[0155]

2-アミノ-3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン(0.66g)を N,N-ジメチルホルムアミド(30ml)に溶解し、60%水素化ナトリウム(0.15g)を室温で加え 30 分間撹拌した。

この混合物に上記粗生成物(1.1g)を加え室温で 8 時間撹拌した。

反応液を水にあげ、トルエン(200ml)で抽出し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、褐色粒状結晶の目的物(0.38g、融点 111.0~114.0 deg C)を得た。

Production Example 16 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-[4-(3-chloro-5-trifluoromethyl pyridine-2-yl aminomethyl)phenyl]-1-methyl-1H-1,2,4-triazole production of (compound number 111)

3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-1-methyl-5-(4-methylphenyl)-1H-1,2,4-triazole (3.20 g), N-bromo succinimide (2.40 g), azobisisobutyronitrile (50 mg) in addition to carbon tetrachloride (100 ml), 1 hour heating and refluxing it did.

After room temperature cooling, it filtered insoluble matter, water wash did filtrate, dried with anhydrous magnesium sulfate.

5-(4-bromomethyl phenyl)-3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole crude product was acquired by vacuum distillation doing solvent.

[0155]

2-amino-3-chloro-5-trifluoromethyl it melted pyridine (0.66 g) in N, N-dimethylformamide (30 ml), added 60% sodium hydride (0.15 g) with room temperature and 30 min agitated.

In this mixture 8-hour it agitated with room temperature including the above-mentioned crude product (1.1 g).

You opened reaction mixture to water, extracted with toluene (200 ml), after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography, object compound (0.38 g, melting point 111.0~114.0 deg C) of brown granular crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl <sub>3</sub> )						3溶媒、δ 値)		
60 MHz、CD Cl nmr data						3 solvent、;de value)		
4. 06					(3H,	s)		
4.06					3 H,	s)		
4. 80					(2H,	d)		
4.80					2 H,	d)		
5. 87					(1H,	t)		
5.87					1 H,	t)		

6. 90		8		30		(9H,	m)		
6.90		8		30		9 H,	m)		

【0156】

製造例 17 O-{4-[3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール-5-イル]ベンジル}-4-クロロフェニルシクロプロピルケトンオキシム(化合物番号 369)の製造

4-クロロフェニルシクロプロピルケトンオキシム(1.4g)を 1,2-ジメトキシエタン(20ml)に溶解し、60%水素化ナトリウム(0.15g)を 0~3 deg C で加え、1 時間撹拌した。

この混合溶液に 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-クロロメチルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(1.70g)を加え、室温で 1 時間、50 deg C で 10 時間撹拌した。

この反応混合物を水にあげ、ジエチルエーテル(200ml)で抽出し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、無色アメ状物質の目的物(0.95g、 $n_D^{20}=1.6155$ )を得た。

NMR データ(60MHz、CDCl<sub>3</sub> 溶媒、 $\delta$  値)

0. 50~2. 40				(5H, m)	
0.50 - 2.40				(5 H,m)	
4. 07				(3H, s)	
4.07				(3 H,s)	
5. 17				(2H, d)	
5.17				(2 H,d)	
6. 80	7		90	(11H, m	)
6.80	7		90	11 H,m	)

【0157】

製造例 18 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(2,4-ジクロロアニリノカルボニル)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 186)の製造

【0156】

Production Example 17 O- {4 - [3 - (2-chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole-5-yl ] benzyl } - 4 -chlorophenyl cyclopropyl ketone oxime production of (compound number 369 )

4 -chlorophenyl cyclopropyl ketone oxime 1 and 2 -dimethoxyethane it melted (1.4 g ) in (20 ml ), added 60% sodium hydride (0.15 g )with 0 - 3 deg C, 1 hour agitated.

In this mixed solution with room temperature 10 hours it agitated with 1 hour, 50 deg C 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl )- 5 - (4 -chloromethyl phenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole including (1.70 g ).

You opened this reaction mixture to water, extracted with diethyl ether (200 ml ), after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , object compound (0.95 g、 $n_D^{20}=1.6155$ ) of colorless syrupy substance was acquired.

nmr data (60 MHz、 CD Cl<sub>3</sub> solvent、  $\delta$  de value )

【0157】

Production Example 18 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - [4 - (2 and 4 -dichloro anilino carbonyl ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 186 )

N-メチル-N-(p-トルエンスルホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンズヒドラゾノイルクロリド(1.70g)、4-シアノ-2'-4'-ジクロロベンズアニリド(1.40g)、無水塩化第二鉄(0.75g)を o-ジクロロベンゼン(10ml)に溶解し、油浴温度 130~140 deg C で 1 時間加熱撹拌した。

この反応混合物を水にあげ、クロロホルム(200ml)で抽出し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、淡黄色粉末結晶の目的物(0.13g、融点 161.0~166.0 deg C)を得た。

N- methyl-N- (p- toluene sulfonyl ) - 2 -chloro-6-fluoro benzohydrazonoyl chloride (1.70 g ), 4 -cyano-2'&4'&-dichloro benzanilide (1.40 g ), it melted anhydrous ferric chloride (0.75 g ) in the o-dichlorobenzene (10 ml ), 1 hour heat and stir did with oil bath temperature 130~140 deg C.

You opened this reaction mixture to water, extracted with chloroform (200 ml ), after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , object compound (0.13 g、 melting point 161.0~166.0 deg C ) of pale yellow powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl <sub>3</sub> 溶媒)				δ 値)	
60 MHz、 CDCl <sub>3</sub> <SB>3</SB> solvent nmr data				;de value)	
4. 08			(3H, s)		
4.08			(3 H,s)		
6. 90		8. 50	(11H, m)		
6.90		8.50	(11 H,m)		

【0158】

製造例 19 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-[4-(4-トリフルオロメチルフェノキシカルボニル)フェニル]-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 335)の製造

N-メチル-N-(p-トルエンスルホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンズヒドラゾノイルクロリド(0.97g)、4-(4-トリフルオロメチルベンゾイルオキシ)ベンゾニトリル(0.88g)、無水塩化第二鉄(0.46g)を o-ジクロロベンゼン(10ml)に溶解し、油浴温度 130~140 deg C で 3 時間加熱撹拌した。

この反応混合物を水にあげ、クロロホルム(200ml)で抽出し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、白色粉末結晶の目的物(0.72g、融点 142.0~146.0 deg C)を得た。

【0158】

Production Example 19 3-(2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - [4 - (4 -trifluoromethyl phenoxy carbonyl ) phenyl ] - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 335 )

N- methyl-N- (p- toluene sulfonyl ) - 2 -chloro-6-fluoro benzohydrazonoyl chloride (0.97 g ), 4 - (4 -trifluoromethyl benzoyl oxy) benzonitrile (0.88 g ), it melted anhydrous ferric chloride (0.46 g ) in o-dichlorobenzene (10 ml ), 3 hours heat and stir did with oil bath temperature 130~140 deg C.

You opened this reaction mixture to water, extracted with chloroform (200 ml ), after water wash, dried with anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , object compound (0.72 g、 melting point 142.0~146.0 deg C ) of white powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl <sub>3</sub> 溶媒)				δ 値)	
60 MHz、 CDCl <sub>3</sub> <SB>3</SB> solvent nmr data				;de value)	

4. 16			(3H, s)		
4.16			(3 H,s )		
7. 00		8. 40	(11H, m)		
7.00		8.40	(11 H,m )		

【0159】

製造例 20 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ホルミルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 137)の製造

ニクロム酸ピリジニウム(5.60g)をジクロロメタン(20ml)に溶解し、この混合溶液に 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ヒドロキシメチルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(3.30g)のジクロロメタン(25ml)溶液を室温で滴下し、室温で 15 時間撹拌した。

反応混合物の不溶物を濾過し、さらにエーテル(30ml)で洗浄し、濾液を濃縮した。

濃縮物をエーテル(200ml)に溶解し、水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、白色粉末結晶の目的物(2.60g、融点 97.0~102.0 deg C)を得た。

[0159]

Production Example 20 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (4 -formyl phenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production of (compound number 137 )

It melted pyridinium dichromate (5.60 g ) in dichloromethane (20 ml ), in this mixed solution 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (4 -hydroxymethyl phenyl)- 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole dripped dichloromethane (25 ml ) solution of (3.30 g ) with room temperature, 15 hours agitated with room temperature.

It filtered insoluble matter of reaction mixture, furthermore washed with ether (30 ml ), concentrated filtrate.

It melted concentrate in ether (200 ml ), after water wash, dried with the anhydrous sodium sulfate.

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , object compound (2.60 g , melting point 97.0~102.0 deg C ) of white powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)nmr data (60 MHz、CDCl<sub>3</sub> solvent、δ value )

4. 10			(3H, s)			
4.10			(3 H,s )			
6. 90~7		. 40	(3H, m)			
6.90 - 7		. 40	(3 H,m )			
8. 00			(4H, s)			
8.00			(4 H,s )			
10. 10			(1H, s)			
10.10			(1 H,s )			

【0160】

[0160]

製造例 21 N-{4-[3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール-5-イル]ベンジリデン}-2,4-ジクロロアニリン(化合物番号 353)の製造 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ホルミルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(0.33g)、2,4-ジクロロアニリン(0.16g)をトルエン(20ml)に溶解し、四塩化チタン(0.5ml)(10 モルジクロロメタン溶液)を加え、攪拌下、8 時間加熱還流した。

冷却後、水洗し無水硫酸マグネシウムにて乾燥した。

溶媒を減圧下留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、淡黄色粉末状結晶の目的物(0.27g、融点 150.0~152.0 deg C)を得た。

Production Example 21 N- {4 - [3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole-5-yl ] benzilidine } - 2 and 4 -dichloro production 3 of aniline (compound number 353 ) - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5- (4 -formyl phenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole (0.33 g ), 2 and 4 -dichloro it melted under agitating, 8 -hour heating and refluxing it did including titanium tetrachloride (0.5 ml ) (10 mole dichloromethane solution ) aniline (0.16 g ) in toluene (20 ml ).

After cooling, water wash it did and dried with anhydrous magnesium sulfate .

solvent was removed under vacuum, residue was refined with the silica gel column chromatography , object compound (0.27 g , melting point 150.0~152.0 deg C ) of pale yellow powder crystal was acquired.

NMRデータ(60MHz、CDCl<sub>3</sub>溶媒、δ 値)

nmr data (60 MHz、 CDCl<sub>3</sub> solvent、 δ value )

4. 10					(3H, s)		
4.10					(3 H,s)		
6. 80~8. 10					(10H, m)		
6.80 - 8.10					(10 H,m)		
8. 35					(1H, s)		
8.35					(1 H,s)		

【0161】

参考例 1 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-(4-ニトロフェニル)-1H-1,2,4-トリアゾールの製造

N-メチル-N-(p-トルエンсульホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンゾヒドラゾノイルクロリド(20.0g)、4-ニトロベンゾニトリル(7.9g)、塩化第二鉄(7.5g)、o-ジクロロベンゼン(100ml)の混合物を 130 deg C で 1 時間攪拌した。

室温に冷却後、反応混合物をクロロホルムに溶解し、5%水酸化ナトリウム水溶液、水で洗浄した。

クロロホルム抽出液を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧下濃縮して反応粗生成物を得た。

この反応粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグ

【0161】

Reference Example 1 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1 -methyl-5- (4 -nitrophenyl ) - production of 1 H-1,2, 4- triazole

N- methyl-N- (p- toluene sulfonyl ) - 2 -chloro-6-fluoro benzo hydrazonoyl chloride (20.0 g ), 4 -nitrobenzonitrile (7.9 g ), ferric chloride (7.5 g ), mixture of o-dichlorobenzene (100 ml ) 1 hour was agitated with 130 deg C.

After cooling, it melted reaction mixture in chloroform in room temperature, 5% sodium hydroxide water solution, washed with water.

After drying and under vacuum concentrating chloroform extraction liquid with anhydrous magnesium sulfate, it acquired crude reaction product.

This crude reaction product was refined with silica gel

ラフィーで精製し、無色粒状結晶の目的物 12.1g(融点 140~143 deg C)を得た。

column chromatography, object compound 12.1g (melting point 140~143 deg C) of colorless granular crystal was acquired.

NMR データ(60MHz, CDCl<sub>3</sub> 溶媒、 $\delta$  値:ppm)

nmr data (60 MHz, CD Cl<sub>3</sub> solvent,  $\delta$  value: ppm)

3. 97				(3H,	s)
3.97				3 H,	s)
4. 00				(2H,	s)
4.00				2 H,	s)
6. 5	7		5	(7H,	m)
6.5	7		5	7 H,	m)

[0162]

参考例 2 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(3-クロロ-4-メチルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの製造

N-メチル-N-(p-トルエンスルホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンゾヒドラゾノイルクロリド(15.0g)、3-クロロ-4-メチルベンズナイトリル(6.7g)、無水塩化アルミニウム(6.0g)、o-ジクロロベンゼン(30ml)の混合物を油浴温度 140 deg C で 1 時間攪拌した。

冷却後、食塩水で洗浄した。

次に無水硫酸マグネシウムで乾燥して減圧濃縮した。

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し目的物 7.4g を得た。

[0163]

参考例 3 5-(4-ブロモメチル-3-クロロフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1,2,4-トリアゾールの製造

四塩化炭素(100ml)に 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(3-クロロ-4-メチルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(6.7g)、N-ブロモコハク酸イミド(4.3g)、アゾビスイソブチロニトリル(50mg)を加え、攪拌下、1 時間加熱還流した。

反応混合物を冷却後不溶物を濾別し、濾液を減圧濃縮した。

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物 5.0g(融点 124.0~126.0

[0162]

Reference Example 2 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (3 -chloro-4- methylphenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production

N- methyl-N- (p- toluene sulfonyl ) - 2 -chloro-6-fluoro benzo hydrazonoyl chloride (15.0 g ), 3 -chloro-4- methyl benzonitrile (6.7 g ), anhydrous aluminum chloride (6.0 g ), mixture of o-dichlorobenzene (30 ml ) 1 hour was agitated with oil bath temperature 140 deg C.

After cooling, you washed with saline.

Drying next with anhydrous magnesium sulfate, vacuum concentration it did.

concentrate which it acquires was refined with silica gel column chromatography and object compound 7.4g was acquired.

[0163]

Reference Example 3 5- (4 -bromomethyl-3- chlorophenyl ) - 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1 -methyl-1,2, 4- triazole production

Under agitating, 1 hour heating and refluxing it made 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (3 -chloro-4- methylphenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole (6.7 g ), the N- bromo succinimide (4.3 g ), including azobisisobutyronitrile (50 mg ) carbon tetrachloride (100 ml ).

reaction mixture after cooling insoluble matter was filtered, filtrate was done the vacuum concentration.

concentrate which it acquires was refined with silica gel column chromatography, object compound 5.0g (melting

deg C)を得た。

【0164】

参考例 4 5-(4-アセトキシメチル-3-クロロフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの製造

DMF(50ml)に 5-(4-ブロモメチル-3-クロロフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(4.9g)、酢酸カリウム(5.8g)を加え、130 deg Cで3時間撹拌した。

反応混合物を室温に冷却後、水に注ぎ込み酢酸エチルで抽出した。

有機層を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧濃縮した。

この濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物 2.4gを得た。

NMR データ(60MHz、CDCl<sub>3</sub> 溶媒、 $\delta$  値:ppm)

2. 13			(3H,	s)
2.13			3 H,	s)
4. 07			(3H,	s)
4.07			3 H,	s)
5. 24			(2H,	S)
5.24			2 H,	S)
6. 90		85	(6H,	m)
6.90		85	6 H,	m)

【0165】

参考例 5 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(3-クロロ-4-ヒドロキシメチルフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの製造

5-(4-アセトキシメチル-3-クロロフェニル)-3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(2.2g)をエタノール(20ml)と水(5ml)の混合溶媒に溶解し、水酸化ナトリウム(0.5g)を加え、撹拌下1時間加熱還流した。

室温に冷却後、反応混合物に酢酸エチルを加え、水洗した。

次に無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧濃縮し、粗結晶を得た。

point 124.0~126.0 deg C )was acquired.

[0164]

Reference Example 4 5- (4 -acetoxy methyl-3- chlorophenyl ) - 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production

In DMF (50 ml ) 3 hours it agitated with 130 deg C 5 - (4 -bromomethyl-3- chlorophenyl ) - 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1-methyl-1H-1,2, 4- triazole (4.9 g ), including potassium acetate (5.8 g ).

After cooling, it poured reaction mixture into water in room temperature and extracted with ethylacetate.

After water wash, it dried organic layer with anhydrous magnesium sulfate, vacuum concentration did.

This concentrate was refined with silica gel column chromatography, object compound 2.4g was acquired.

nmr data (60 MHz、 CD Cl<sub>3</sub> solvent、  $\delta$  value: ppm )

[0165]

Reference Example 5 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 5 - (3 -chloro-4- hydroxymethyl phenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole production

5 - (4 -acetoxy methyl-3- chlorophenyl ) - 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl ) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole ethanol (20 ml ) with it melted underagitating 1 hour heating and refluxing it did including sodium hydroxide (0.5 g ) (2.2 g ) in mixed solvent of water (5 ml ).

In room temperature after cooling, water wash it made reaction mixture including the ethylacetate.

It dried next with anhydrous magnesium sulfate, vacuum concentration did, acquired crude crystal.

この粗結晶をヘキサン-エタノール混合溶媒で洗浄し、目的物 1.3g(融点 111~113 deg C)を得た。

This crude crystal was washed with hexane-ethanol mixed solvent, object compound 1.3g (melting point 111~113 deg C) was acquired.

NMR データ(60MHz、CDCl<sub>3</sub> 溶媒、δ 値:ppm)

nmr data (60 MHz、CD Cl<sub>3</sub> solvent、δ value: ppm)

3. 50			(1H,	t)
3.50			1 H,	t)
4. 05			(3H,	s)
4.05			3 H,	s)
4. 75			(2H,	d)
4.75			2 H,	d)
6. 95		0	(6H,	m)
6.95		0	6 H,	m)

【0166】

参考例 6 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-ヒドロキシフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの製造

o-ジクロロベンゼン(200ml)に 4-メトキシベンズニトリル(31.9g)、無水塩化第二鉄(42.2g)を加え、攪拌下 120 deg C に加熱した。

この混合物に o-ジクロロベンゼン(300ml)に溶解した N-メチル-N-(p-トルエンシルホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンゾヒドラゾノイルクロリド(62.9g)を 120 deg C で攪拌しながら 30 分かけて滴下し、さらに 120 deg C で 3 時間攪拌した。

室温に冷却後、反応混合物を大量の水にあげクロロホルムで抽出した。

得られた有機層に 10%NaOH 水溶液(200ml)と 25%アンモニア水(200ml)を加え 50 deg C で 1 時間攪拌した。

室温冷却後有機層を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧濃縮し、3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-メトキシフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの粗生成物 63.7g を得た。

ベンゼン(300ml)に 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-メトキシフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾールの粗生成物(70.5g)、無水塩化アルミニウム(80.0g)を加え、攪拌し 3 時間加熱還流し

【0166】

Reference Example 6 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-(4-hydroxyphenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole production

In o-dichlorobenzene (200 ml) under agitating it heated 4-methoxy benzonitrile (31.9 g), including the anhydrous ferric chloride (42.2 g) to 120 deg C.

While N-methyl-N- which is melted in o-dichlorobenzene (300 ml) in this mixture (p-toluene sulfonyl)-2-chloro-6-fluoro benzo hydrazonoyl chloride agitating (62.9 g) with 120 deg C 30 min applying, it dripped, furthermore 3 hours agitated with 120 deg C.

After cooling, you opened reaction mixture to water of large scale in the room temperature and extracted with chloroform.

In organic layer which it acquires 1 hour it agitated with 50 deg C 10%NaOH aqueous solution (200 ml) with including 25% ammonia water (200 ml).

After room temperature cooling after water wash, it dried organic layer with the anhydrous magnesium sulfate, vacuum concentration did, 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-(4-methoxyphenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole acquired crude product 63.7g.

It agitated in benzene (300 ml) 3-(2-chloro-6-fluorophenyl)-5-(4-methoxyphenyl)-1-methyl-1H-1,2,4-triazole crude product (70.5 g), including anhydrous aluminum chloride (80.0 g), 3 hours heating and



た。

室温冷却後、反応混合物を氷水にあげトルエンで抽出した。

得られた有機層を水洗後、20%NaOH 水溶液で抽出し、水層を氷で冷却しながら濃硫酸を少量ずつ加え酸性にし、酢酸エチルで抽出した。

得られた有機層を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧濃縮して目的物 55.5g(融点 236~240 deg C)を得た。

NMR データ(60MHz, CDCl<sub>3</sub> 溶媒、 $\delta$  値:ppm)

4. 10				(3H, s)	
4.10				(3 H,s )	
7. 00~7. 90				(7H, m)	
7.00 - 7.90				(7 H,m )	
10. 85				(1H, s	)
10.85				1 H,s	)

リアゾール誘導体を有効成分としてなる。

[0167]

本発明化合物を殺虫、殺ダニ剤として使用するには本発明化合物それ自体で用いてもよいが、製剤化に一般的に用いられる担体、界面活性剤、分散剤または補助剤等を配合して、粉剤、水和剤、乳剤、微粒剤または粒剤等に製剤して使用することもできる。

製剤化に際して用いられる担体としては、ジークライト、タルク、ベントナイト、クレイ、カオリン、珪藻土、ホワイトカーボン、パーミキュライト、消石灰、珪砂、硫安、尿素等の固体担体、イソプロピルアルコール、キシレン、シクロヘキサノン、メチルナフタレン等の液体担体等があげられる。

界面活性剤および分散剤としては、アルキルベンゼンスルホン酸金属塩、ジナフチルメタンジスルホン酸金属塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキルアリールスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、ポリオキシエチレングリコールエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンソルビタンモノアルキレート等があげられる。

refluxing did.

After room temperature cooling, you opened reaction mixture to ice water and extracted with toluene.

While after water wash, extracting organic layer which it acquires with 20%NaOH aqueous solution, cooling water layer with ice at a time trace it added concentrated sulfuric acid and made acidic, extracted with ethylacetate.

After water wash, it dried organic layer which it acquires with anhydrous magnesium sulfate, vacuum concentration did and acquired object compound 55.5g (melting point 236~240 deg C).

nmr data (60 MHz, CD Cl<sub>3</sub> solvent,  $\delta$  value: ppm)

It becomes with triazole derivative as active ingredient.

[0167]

You use the compound of this invention as insecticidal, miticide, it is possible to use with that itself of the compound of this invention, but combining support, surfactant, dispersant or auxiliary agent etc which is used for formulating generally, formulation making powder agent, wettable, emulsion, fine granule or granule, etc it can also use.

Zieklite, talc, bentonite (DANA 71.3.1a.1-2), clay, kaolin, diatomaceous earth, white carbon, vermiculite (DANA 71.2.2d.3), you can list hydrated lime, silica sand, ammonium sulfate, urea or other solid carrier, isopropyl alcohol, xylene, cyclohexanone, methyl naphthalene or other liquid carrier etc as support which is used in case of formulating.

As surfactant and dispersant, you can list alkylbenzene sulfonic acid metal salt, dinaphthyl methane disulfonic acid metal salt, alcohol sulfuric acid ester salt, alkylaryl sulfonic acid salt, lignin sulfonate, polyoxyethylene glycol ether, polyoxyethylene alkyl aryl ether, polyoxyethylene sorbitan mono alkylate etc.

補助剤としては、カルボキシメチルセルロース、ポリエチレングリコール、アラビアゴム等があげられる。

使用に際しては適当な濃度に希釈して散布するかまたは直接施用する。

【0168】

本発明の殺虫、殺ダニ剤は茎葉散布、土壌施用、育苗箱施用または水面施用等により使用することができる。

有効成分の配合割合については必要に応じて適宜選ばれるが、粉剤または粒剤とする場合は0.05~20%(重量)、好ましくは0.1%~10%(重量)の範囲から適宜選ぶのがよい。

乳剤または水和剤とする場合は0.5~80%(重量)が適当である。

好ましくは1~60%(重量)の範囲から適宜選ぶのがよい。

【0169】

本発明の殺虫、殺ダニ剤の施用量は使用される化合物の種類、対象害虫、発生傾向、被害の程度、環境条件、使用する剤型などによってかわるが、粉剤および粒剤のようにそのまま使用する場合は、有効成分として10アール当り0.05g~5kg、好ましくは0.1g~1kgの範囲から適宜選ぶのがよい。

また、乳剤および水和剤とする場合のように液状で使用する場合は、0.1~5,000ppm、好ましくは1~1,000ppmの範囲から適宜選ぶのがよい。

【0170】

本発明の殺虫、殺ダニ剤は、他の殺虫剤、殺菌剤、肥料、植物成長調整剤を混合して使用することもできる。

【0171】

次に、代表的な製剤例をあげて製剤方法を具体的に説明する。

化合物、添加剤の種類および配合比率は、これのみに限定されることなく広い範囲で変更可能である。

以下の説明において、「%」は重量百分率を示す。

【0172】

製剤例1 乳剤

化合物番号(111)30%、シクロヘキサノン 20%、ポリオキシエチレンアルキルアールエーテル

As auxiliary agent, you can list carboxymethyl cellulose and polyethylene glycol, gum arabic etc.

Diluting in suitable concentration at time of use, scattering fabric itdoes, or application does directly.

【0168】

You can use insecticidal, miticide of this invention foliage spreading, soil application, seedling box application or with water surface application etc.

according to need as needed it is chosen concerning proportion of active ingredient, but when it makes powder agent or granule, 0.05 - 20% (weight), it is good as needed to choose from range of preferably 0.1%~10% (weight).

When it makes emulsion or wettable, 0.5 - 80% (weight) are suitable.

It is good as needed to choose from range of preferably 1~60% (weight).

【0169】

application amount of insecticidal, miticide of this invention extent, environmental condition, of types, object insect pest, tendency to occur, damage of the compound which is used changes with drug form etc which is used, but the powder agent and like granule when you use that way, it is good as needed to choose from range of per 10 ares 0.05g~5 kg, preferably 0.1 g~1 kg, as active ingredient.

In addition, like when it makes emulsion and wettable when you use with liquid state, it is good as needed to choose from range of 0.1 -5,000 ppm, preferably 1~1,000 ppm.

【0170】

insecticidal, miticide of this invention can also use, mixing other insecticide, microbicide, fertilizer, plant growth adjusting agent.

【0171】

Next, increasing representative Formulation Example, you explain formulation method concretely.

types and mixing ratio of compound, additive are changeable in wide range without being limited in only this.

At time of explaining below, "%" shows weight percent.

【0172】

Formulation Example 1 emulsion

compound number (111) 30%, melting cyclohexanone 20%, polyoxyethylene alkyl aryl ether 11%, calcium

11%、アルキルベンゼンスルホン酸カルシウム 4%およびメチルナフタリン 35%を均一に溶解して乳剤とした。

【0173】

#### 製剤例 2 水和剤

化合物番号(67)40%、珪藻土 15%、クレー15%、ホワイトカーボン 25%、ジナフチルメタンジスルホン酸ナトリウム 2%およびリグニンスルホン酸ナトリウム 3%を均一に混合粉碎して水和剤とした。

【0174】

#### 製剤例 3 粉剤

化合物番号(43)2%、珪藻土 5%およびクレー 93%を均一に混合粉碎して粉剤とした。

【0175】

#### 製剤例 4 粒剤

化合物番号(335)5%、ラウリルアルコール硫酸エステルナトリウム塩 2%、リグニンスルホン酸ナトリウム 5%、カルボキシメチルセルロース 2%およびクレー86%を均一に混合粉碎する。

この混合物 100 重量部に水 20 重量部を加えて練合し、押出式造粒機を用いて 14~32 メッシュの粒状に加工したのち、乾燥して粒剤とした。

【0176】

#### 【発明の効果】

本発明のトリアゾール誘導体は、コナガ、シロイチモジヨトウ、ニカメイガ、ハスモンヨトウ等の鱗翅目害虫、ワタアブラムシ、モモアカアブラムシ、ダイコンアブラムシ等のアブラムシ類、オンシツコナジラミなどのコナジラミ類等の半翅目害虫、イエバエ、アカイエカなどの双翅目害虫、イネミズゾウムシ、アズキゾウムシ、ウリハムシ等の鞘翅目害虫、ワモンゴキブリ、チャバネゴキブリ等の直翅目害虫ならびにナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハダニ等のハダニ類の防除に有効である。

alkylbenzenesulfonate 4% and methyl naphthalene 35% in uniform, it made emulsion.

【0173】

#### Formulation Example 2 wettable

compound number (67) 40%, mixing and pulverization designating diatomaceous earth 15%, clay 15%, white carbon 25%, sodium dinaphthyl methane disulfonate 2% and sodium lignin sulfonate 3% as the uniform, it made wettable.

【0174】

#### Formulation Example 3 powder agent

compound number (43) 2%, mixing and pulverization designating diatomaceous earth 5% and clay 93% as the uniform, it made powder agent.

【0175】

#### Formulation Example 4 granule

compound number (335) 5%, sodium salt 2%, sodium lignin sulfonate 5%, carboxymethyl cellulose 2% of lauryl alcohol sulfate ester and clay 86% the mixing and pulverization it makes uniform.

Kneading combination it made this mixture 100 parts by weight including water 20 parts by weight, after processing in granular of 14 - 32 mesh making use of the extrusion type granulator, drying, it made granule.

【0176】

#### [Effects of the Invention]

As for triazole derivative of this invention, *Plutella xylostella* (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth), *Spodoptera exigua* (Hubner) (beet armyworm), *Chilo suppressalis* (Walker) (Asiatic rice borer), *Spodoptera litura* (Fabricius) (tobacco cutworm) or other lepidopteran pest, *Aphis gossypii* Glover (cotton aphid), *Myzus persicae* [Sulzer] (green peach aphid), *Brevicoryne brassicae* [Linnaeus] (cabbage aphid) or other Aphididae (aphids), *Trialeurodes vaporariorum* [Westwood] (greenhouse whitefly) or other Aleyrodidae (whiteflies) or other Hemiptera insect pest, Muscidae (house flies), *Culex pipiens* Pallens or other Diptera insect pest, rice water weevil (*Lissorhoptrus oryophilus* Kuschel), *Callosobruchus chinensis* (Linnaeus) (adzuki bean weevil), *Aulacophora femoralis* (Motschulsky) (cucurbit leaf beetle) or other Coleoptera insect pest, *Periplaneta americana* [Linnaeus] (American cockroach), *Blattella germanica* [Linnaeus] (German cockroach) or other Orthoptera insect pest and *Tetranychus urticae* Koch (two-spotted spider mite),

特にコナガ、シロイチモジヨトウ、ニカメイガ、ハスモンヨトウ等の鱗翅目害虫、ワタアブラムシ、モモアカアブラムシ、ダイコンアブラムシ等のアブラムシ類、ナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハダニ等のハダニ類に対しては極めて優れた防除効果を示す。

【0177】

次に本発明化合物の奏する効果について試験例をもって説明する。

尚、使用した比較薬剤 a および b は特開昭 56-154464 号公報明細書に例示された〔例 1〕および〔例 18〕の化合物であり、また比較薬剤 c は RD278004 号公開技報に例示されている〔化合物番号 24〕の化合物である。

これらは本発明化合物と同様に製剤して使用した。

【0178】

比較薬剤 a: 3,5-ビス(2-クロロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール

比較薬剤 b: 3-(2-クロロフェニル)-1-メチル-5-(3-メチルフェニル)-1H-1,2,4-トリアゾール

比較薬剤 c: 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(2,4-ジクロロフェニル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール

【0179】

試験例 1 コナガ殺虫試験

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 500ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液にキャベツ葉を浸漬し、風乾後、塩化ビニール製カップに入れた。

その中にコナガ幼虫 10 頭を放ち、蓋をした。

*Tetranychus kanzawai* Kishida (Kanzawa spider mite), It is effective to prevention of *Panonychus citri* [McGregor] (citrus red mite) or other Tetranychidae (spider mite).

Especially *Plutella xylostella* (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth), *Spodoptera exigua* (Hubner) (beet armyworm), *Chilo suppressalis* (Walker) (Asiatic rice borer), the *Spodoptera litura* (Fabricius) (tobacco cutworm) or other lepidopteran pest, *Aphis gossypii* Glover (cotton aphid), *Myzus persicae* [Sulzer] (green peach aphid), *Brevicoryne brassicae* [Linnaeus] (cabbage aphid) or other Aphididae (aphids), the *Tetranychus urticae* Koch (two-spotted spider mite), *Tetranychus kanzawai* Kishida (Kanzawa spider mite), vis-a-vis *Panonychus citri* [McGregor] (citrus red mite) or other Tetranychidae (spider mite) protective effect which quite is superior is shown.

【0177】

Concerning effect which the compound of this invention has next you explain with the Test Example.

Furthermore as for comparative chemical a and b which is used it was illustrated to the Japan Unexamined Patent Publication Showa 56-154464 disclosure Specification {Example 1} and with compound of {Example 18}, in addition as for comparative chemical c it is a compound of {compound number 24} which is illustrated to RD2 7800 4 number Kokai Giho.

formulation doing in same way as the compound of this invention, you used these.

【0178】

comparative chemical a: 3,5-bis (2 -chlorophenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole

comparative chemical b: 3- (2 -chlorophenyl) - 1 -methyl-5- (3 -methylphenyl) - 1 H-1,2, 4- triazole

comparative chemical c: 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (2 and 4 -dichlorophenyl) - 1 -methyl-1H-1,2, 4- triazole

【0179】

Test Example 1 *Plutella xylostella* (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth) insecticidal test

In concentration of 500 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

It soaked cabbage leaf in reagent solution, after air dry, inserted in the vinyl chloride make cup.

Among those *Plutella xylostella* (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth) larva 10 heads was shot, cover was

その後、25 deg C の恒温室に置き、6 日後に死虫数を調査し数 1 の計算式により死虫率を求めた。

死虫率は表 27 の基準により評価し、その結果を表 28 に示した。

なお、試験は 2 連制で行った。

【0180】

【数 1】

$$\text{死虫率} = \frac{\text{調査日の死虫数}}{\text{処理前幼虫数}} \times 100$$

【0181】

【表 27】

死虫率	評価
90%以上の死虫率	A
70%以上90%未満の死虫率	B
50%以上70%未満の死虫率	C
50%未満の死虫率	D

【0182】

【表 28】

番 号	評 価	番 号	評 価
1	B	276	A
2	B	286	A
43	B	290	A
55	B	294	A
66	A	300	A
67	A	328	A
68	A	335	B
111	A	346	B
156	B	353	B
186	A	369	A
190	A	比較 a	D
229	A	比較 b	D

【0183】

試験例 2 シロイチモジヨトウ殺虫試験

done.

After that, you placed in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated the number of dead insects 6 days and later you sought insect mortality with computational formula of the Mathematical Formula 1.

You appraised insect mortality with standard of Table 27, showed result in Table 28.

Furthermore, it tested with 2 connected systems.

[0180]

[Mathematical Formula 1]

[0181]

[Table 27]

[0182]

[Table 28]

[0183]

Test Example 2 *Spodoptera exigua* (Hubner) (beet armyworm) insecticidal test

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 500ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液にキャベツ葉を浸漬し、風乾後、塩化ビニール製カップに入れた。

その中にシロイチモジヨウ幼虫 10 頭を放ち、蓋をした。

その後、25 deg C の恒温室に置き、6 日後に死虫数を調査し数 1 の計算式により死虫率を求めた。

死虫率は表 27 の基準により評価し、その結果を表 29 に示した。

なお、試験は 2 連制で行った。

【0184】

【表 29】

3

番 号	評 価
6 6	A
8 7	A
6 8	A
1 1 1	A
1 8 6	A
2 2 9	A
2 8 6	A
2 9 4	B
3 0 0	A
3 6 9	A
比較 a	D
比較 c	D

【0185】

試験例 3 ニカメイガ殺虫試験

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 500ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液にイネ芽だし粕を浸漬し、塩化ビニール製カップに入れた。

その中にニカメイガ幼虫 10 頭を放ち、蓋をした。

In concentration of 500 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

It soaked cabbage leaf in reagent solution, after air dry, inserted in the vinyl chloride make cup.

Among those Spodoptera exigua (Hubner ) (beet armyworm ) larva 10 heads was shot, cover was done.

After that, you placed in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated the number of dead insects 6 days and later you sought insect mortality with computational formula of the Mathematical Formula 1.

You appraised insect mortality with standard of Table 27, showed result in Table 29.

Furthermore, it tested with 2 connected systems.

[0184]

[Table 29]

3

【0185】

Test Example 3 Chilo suppressalis (Walker ) (Asiatic rice borer ) insecticidal test

In concentration of 500 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

It soaked rice sprout in reagent solution, inserted in vinyl chloride make cup.

Among those Chilo suppressalis (Walker ) (Asiatic rice borer ) larva 10 heads was shot, cover was done.

その後、25 deg C の恒温室に置き、6 日後に死虫数を調査し数 1 の計算式により死虫率を求めた。

死虫率を表 27 の基準により評価し、その結果を表 30 に示した。

なお、試験は 2 連制で行った。

【0186】

【表 30】

番 号	評 価
27	A
66	A
67	A
107	A
111	A
186	A
229	A
286	A
290	A
294	A
300	A
353	A
369	A
385	B
比較 a	D
比較 c	D

【0187】

試験例 4 ワタアブラムシ殺虫試験

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 100ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液に、予めワタアブラムシ若虫を接種しておいたキュウリ苗を浸漬し、風乾した。

処理後のキュウリ苗は 25 deg C の恒温室に置き、3 日後に死虫数を調査し数 1 の計算式を用い死虫率を求め、その結果を表 27 の基準により評価し、表 31 に示した。

試験は 2 連制で行った。

After that, you placed in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated the number of dead insects 6 days and later you sought insect mortality with computational formula of the Mathematical Formula 1.

insect mortality was appraised with standard of Table 27, result was shown in Table 30.

Furthermore, it tested with 2 connected systems.

[0186]

[Table 30]

[0187]

Test Example 4 Aphis gossypii Glover (cotton aphid) insecticidal test

In concentration of 100 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

In reagent solution, beforehand it soaked Cucumis sativus L. (cucumber) seedling which inoculation does Aphis gossypii Glover (cotton aphid) nymph, air dry did.

You put Cucumis sativus L. (cucumber) seedling after treating in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated number of dead insects 3 days and later you sought insect mortality making use of computational formula of Mathematical Formula 1, you appraised result with standard of Table 27, showed in Table 31.

It tested with 2 connected systems.

【0188】

【表 31】

番 号	評 価
2	A
3	B
24	B
25	A
102	B
103	B
107	A
145	B
196	A
286	B
345	A
351	B
369	A

[0188]

[Table 31]

【0189】

試験例 5 ナミハダニ殺ダニ試験

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 500ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液に、予めナミハダニ成虫を接種しておいたダイズ苗を浸漬し、風乾した。

処理後のダイズ苗は 25 deg C の恒温室に置き、14 日後に生存虫数を調査し、数 2 の計算式により防除価を求めた。

防除価を表 27 の基準により評価し、その結果を表 32 に示した。

試験は 2 連制で行った。

【0190】

【数 2】

$$\text{防除価} = \left( 1 - \frac{\text{無処理区の処理前虫数}}{\text{処理区の調査日成虫数}} \times \frac{\text{処理区の処理前虫数}}{\text{無処理区の調査日成虫数}} \right) \times 100$$

【0191】

[0189]

Test Example 5 Tetranychus urticae Koch (two-spotted spider mite ) acaricidal test

In concentration of 500 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

In reagent solution, beforehand it soaked soybean seedling which inoculation does the Tetranychus urticae Koch (two-spotted spider mite ) adult, air dry did.

You put soybean seedling after treating in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated number of surviving insects 14 days, later you sought protection value with the computational formula of Mathematical Formula 2.

protection value was appraised with standard of Table 27, result was shown in Table 3 2.

It tested with 2 connected systems.

[0190]

[Mathematical Formula 2]

[0191]



【表 32】

番 号	評 価	番 号	評 価
2	A	156	B
6	A	161	A
13	B	229	B
25	B	248	B
44	B	252	B
66	A	254	A
67	A	276	A
68	B	282	B
101	B	286	A
102	B	290	A
111	A	294	A
131	A	300	A
132	A	328	A
144	B	344	A
145	B	369	A
151	A	比較b	D
153	A		

[Table 32]